



THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par l'Institut National Polytechnique de Toulouse
Discipline ou spécialité : Ingénierie microbienne et enzymatique

Présentée et soutenue par Jan GÜNTHER
Le 8 décembre 2009

Titre : *Caractérisation et optimisation des phénomènes de transfert dans un double bioréacteur à membranes*

JURY

PHILIPPE MOULIN, Professeur des Universités, M2P2, Marseille (Rapporteur)
IVAN MARC, Directeur de recherche CNRS, ENSAIA, Vandoeuvre les Nancy (Rapporteur)
MARIELLE BOUIX, Professeur des Universités, AgroParisTech, Thiverval Grignon (Examinatrice)
CLAUDE GILLES DUSSAP, Professeur des Universités, Polytech' Clermont-Ferrand
(Examineur)
PHILIPPE SCHMITZ Professeur, INSA Toulouse (Invite)

Ecole doctorale : SEVAB
Unité de recherche : LISBP / LGC Toulouse
Directeur(s) de Thèse : C. Albasi
C. Lafforgue

A mes parents,

Remerciements

Trois années de remerciements, pas toujours la partie la plus facile à rédiger. Cette période de ma carrière scientifique a, en effet, été riche pour moi, que ce soit du point de vue scientifique ou humain. Je tiens à remercier de nombreuses personnes pour cela.

Cette thèse a été réalisée au sein du laboratoire d'Ingénierie des Systèmes Biologiques et des Procédés ainsi qu'au Laboratoire de Génie Chimique. Je tenais donc à remercier Nicholas Lindley et Joël Bertrand d'avoir accepté que ma thèse puisse se dérouler au sein de ces deux laboratoires.

Je tenais également à remercier Philippe Moulin et Marielle Bouix d'avoir été les rapporteurs de ce mémoire. Je les remercie pour la discussion riche et intéressante qui s'est déroulée lors de ma soutenance de thèse. A ce même titre, je tenais à remercier les autres membres du jury. Merci donc à Claude Gilles Dussap d'avoir accepté de prendre la présidence de ce jury et à Philippe Schmitz, dont les remerciements viendront plus tard.

Christine Lafforgue et Claire Albasi : Je n'aurais jamais assez de mots dans cette thèse pour vous remercier. Vous m'avez tellement aidé, tant sur le point scientifique qu'humain. Faire confiance est le pilier d'un travail d'équipe comme l'est une thèse. Aussi pour m'avoir fait réellement confiance depuis mon recrutement jusqu'à ma rédaction, je vous remercie énormément :

- Christine, en écrivant ces lignes des images me reviennent : des nuits de fermentation, des repas à Castanet, un dessin de moi fait par ta fille, des conseils scientifiques, des encouragements, un bureau toujours ouvert.... Merci de m'avoir si bien intégré et un très grand merci à toi pour tout ce que tu es.

- Claire, même si géographiquement tu étais plus éloignée, ma thèse ne serait pas ce qu'elle est sans toi. Ta vision et ton recul scientifique m'ont permis de comprendre ce qu'était réellement un chercheur. Tes remerciements lors de ma soutenance m'ont vraiment beaucoup touché. Un très grand merci à toi, et à très vite...

Philippe Schmitz que je considère comme mon troisième directeur de thèse : si il y bien une chose que je n'aurais jamais pensé en débutant cette thèse c'est de parler de l'équation de Navier Stokes lors d'entraînement de course à pied sur les vallons de Pech David. De la même manière que je le fais pour Claire et Christine, les mots me manquent pour t'exprimer toute ma gratitude. Merci, Merci pour ta disponibilité, ta rigueur scientifique et ta pédagogie (faire comprendre la CFD à un chimiste pur). A très bientôt ...pour un podium à la Balade de Riquet ?

Parce qu'une équipe de recherche se compose également de personnel administratif et technique, je tenais à les remercier pour leur disponibilité. Dans ce cadre là je ne peux oublier le Mac Guyver du Hall 1, le Kane du LISBP, la main technique et intelligente de l'équipe TIM, le flambeur de Gambas,

un copain et je pense un super papa : Christophe Ellero. Je ne peux également pas oublier Bernardo Reboul pour son aide précieuse durant ces années de thèse.

Ces trois années m'ont permis de rencontrer tout d'abord des collègues de bureau, puis pour certains des colocataires et amis : Un peu de nostalgie quand je repense au team du bureau « QSLP » (private joke) :

Sandra pour m'avoir écouté quand ça n'allait pas un après midi de mai au Café du matin, au Carmes, Romain pour toutes nos soirées à l'Eldorado et pour avoir été là quand il le fallait, Julien pour les infos de franceinfo.com, pour nos discussions sur tout et n'importe quoi. Un énorme merci à vous trois pour ces nuits de fermentations scientifiques et ces nuits de fermentations toulousaines. Merci d'avoir partagé presque un an et demi le même toit, la même table, le même bureau, parfois les mêmes paillasses et même pipettes.

Le LISBP est issue de la fusion de deux laboratoires et j'ai eu l'opportunité de travailler et de rencontrer un certain nombre de personnes que je souhaite remercier ici :

Coté GBA : la petite Emilie, Claire ma copine de manip, les petits djeunz : Jilian, Julie B., Sirichai, Yannick, Bérengère. L'équipe fermentation 'EAD8' au complet (ma deuxième équipe d'adoption...) : Xavier, Sandrine, Stéphane, Nathalie, Julie, Carole et Carine, Luc, Eric...

Coté GPE : Je tenais à remercier Djoule, Ben, Angélique, Sam, JP, que ce soit pour les discussions scientifiques que pour les discussions tout court autour d'un verre à la ferme des 50...

Si je suis ce que je suis c'est grâce à mon père et grâce à ma mère. Merci de m'avoir soutenu, encouragé, et poussé pendant ces longues années d'études. Ce travail de thèse vous est dédié et je suis fier d'être votre fils.

Je ne peux clore ces remerciements sans remercier avec émotion la personne qui compte le plus au monde pour moi maintenant. Ma bretonne, ma meilleur amie, ma compagne, mon soutien de tout les jours, Marlène. Petit casse tête également : NFNVEERNNS

Résumé

L'idée de base est de permettre à deux microorganismes de partager le même environnement tout en les maintenant séparées à l'aide d'une membrane perméable les retenant sélectivement. La principale contrainte résulte du transfert des composées d'intérêts limité par l'écoulement dans et autour des fibres ainsi que dans module et par le colmatage. Le double bioréacteur à membrane étudié dans cette thèse, de par son fonctionnement, alterne les cycles de filtration et rétrofiltration (ou rétrolavage), limitant ainsi en partie le colmatage. Ce travail de thèse s'est donc attaché à approfondir la connaissance des mécanismes de limitation au transfert mis en jeu lors de la filtration de fluide biologique complexes et évolutifs en fonction des conditions opératoires et des caractéristiques géométriques du module de filtration à fibres creuses. Dans cet objectif, sur la base des choix de configuration de module membranaire proposés dans cette étude, et afin de tendre vers une optimisation rationnelle de l'utilisation de ce dispositif, l'étude s'appuya sur l'utilisation d'outils de mécanique des fluides numériques, complétée par une approche expérimentale menée dans des conditions modèles. Les simulations réalisées par cette approche ont ainsi mis en évidence de grandes variations des vitesses de filtration le long de la fibre et ceci en lien direct avec une augmentation de la perte de charge à l'extérieur des fibres due au confinement induisant une baisse des performances de filtration. De manière similaire, un modèle numérique de formation de dépôt nous a permis d'évaluer l'effet du confinement de fibres. Il entraîne une augmentation de pression dans la partie fluide externe induisant une forte variation de pertes de charges entraînant une répartition du dépôt le long de la fibre beaucoup plus inhomogène. Le retour du numérique à l'expérimental réalisé s'est attaché à décrire l'influence des conditions de mise œuvre sur les performances de filtration du pilote. L'analyse méthodique de l'influence du sens de filtration et de la compacité dans le cas de fluides modèles (suspension de différents microorganismes / solutions de protéines modèles) et dans le cas de fluides biologiques évolutifs (milieux de fermentation + micro organismes) fut réalisée. L'ensemble de ces résultats nous permettent de donner des recommandations aux futurs utilisateurs du double bioréacteur à membranes.

Sommaire

Sommaire	13
Introduction générale.	19
Chapitre I : Synthèse bibliographique	25
<i>I.1 Contexte et enjeux scientifiques.</i>	<i>27</i>
I.1.1 Les cultures mixtes.....	27
I.1.2 Particularité des cultures mixtes.....	27
<i>I.2 Outil d'étude : Le double bioréacteur à membranes.....</i>	<i>29</i>
I.2.1 Outils de séparation membranaire couplés à la culture microbienne.....	29
I.2.2 Le double bioréacteur à membranes immergées DBAMI: outil dédié à l'étude des cultures mixtes.	31
<i>I.3 Présentation générale de la filtration membranaire.</i>	<i>39</i>
I.3.1 Classification des procédés membranaires.	39
I.3.2 Modes de fonctionnement.....	40
I.3.3 Matériaux et configuration des modules de filtration.	43
I.3.4 Configuration et design des membranes.....	44
I.3.5 Module à fibres creuses.	45
<i>I.4 Transfert de matière à l'interface et limitations : polarisation de concentration et colmatage en microfiltration.</i>	<i>48</i>
I.4.1 Transfert de solvant.	48
I.4.2 Polarisation de concentration.....	49
I.4.3 Colmatage.....	51
<i>I.5 Approche numérique de la filtration membranaire et modélisation de la formation d'un dépôt.....</i>	<i>58</i>
I.5.1 Mécanique des fluides appliquée à la filtration membranaire.....	58

I.5.2 CFD en condition laminaire et modèle simple.....	59
I.5.3 Utilisation de la CFD pour prédire les écoulements au sein d'une géométrie de module de filtration.....	62
I.5.4 Simulation de la formation d'un dépôt.	64
Chapitre II : Matériel & Méthodes	73
<i>II.1 Pilote de laboratoire : Le double bioréacteur à membranes immergées (DBAMI).....</i>	<i>75</i>
II.1.1 Caractéristiques du pilote.....	75
II.1.2 Amélioration et optimisation du dispositif pilote.	76
II.1.3 Pression transmembranaire et capteur de pression.	78
<i>II.2 Membranes et modules membranaires.....</i>	<i>81</i>
II.2.1 Membranes.	81
II.2.2 Modules membranaires.....	81
II.2.3 Lavages chimiques.	82
II.2.4 Mise en place d'un protocole de détermination du flux de filtration à niveau constant.....	83
II.2.5 Détermination et calcul des flux et flux net de filtration.	83
II.2.6 Evaluation des résistances caractéristiques.	84
<i>II.3 Préparation des milieux modèles et milieux de culture.....</i>	<i>89</i>
II.3.1 Milieux modèles.	89
II.3.2 Microorganismes et conditions de culture.	90
<i>II.4 Techniques analytiques mises en œuvre.....</i>	<i>92</i>
II.4.1 Méthodes générales d'analyse des suspensions de microorganismes.	92
II.4.2 Mesures spécifiques aux fluides modèles levures réhydratées et BSA.....	93
II.4.3 Détermination de la concentration en glucose.....	97
II.4.4 Evaluation du pouvoir colmatant.....	97
Chapitre III : Impact de la densité de fibres ou compacité sur les performances de filtration du module : approche numérique.	101
<i>III.1 Présentation du travail, objectifs et approche.....</i>	<i>103</i>

<i>III.2 Introduction.</i>	<i>106</i>
<i>III.3 Material and methods.</i>	<i>108</i>
III.3.1 Experimental device.	108
III.3.2 Definition of the model used for numerical simulations.	110
<i>III.4 Results and discussion.</i>	<i>116</i>
<i>III.5 Conclusion.</i>	<i>124</i>
<i>III.6 Simulation en trois dimensions de l'écoulement dans les modules de fibres creuses.</i>	<i>128</i>
III.6.1 Description du problème, hypothèses et méthodes.	128
III.6.2 Description géométrique.	129
III.6.3 Résultats et discussion.	131
 Chapitre IV : Impact de la densité de fibres sur la répartition spatiale du dépôt par une approche numérique.	141
<i>IV.1 Présentation du travail, objectifs et approche.</i>	<i>143</i>
<i>IV.2 Introduction.</i>	<i>146</i>
<i>IV.3 Material and Methods.</i>	<i>148</i>
IV.3.1 Referring experimental device and parameters used for simulations.	148
IV.3.2 Flow modelling.	149
IV.3.3 Deposit cake modelling.	154
<i>IV.4 Results and Analyses.</i>	<i>158</i>
IV.4.1 Inside/Out filtration mode (IO).	158
IV.4.2 Outside/In filtration mode (OI).	159
<i>IV.5 Discussion and Conclusions</i>	<i>162</i>
 Chapitre V : Approche expérimentale.	171
<i>V.1 Dynamique d'homogénéisation.</i>	<i>173</i>
<i>V.2 Problématique et objectif de l'étude.</i>	<i>176</i>
<i>V.3 Performances de filtration lors de l'utilisation du modules 2800 fibres.</i>	<i>178</i>

V.3.1 Filtration characteristics of hollow fiber microfiltration membranes used in a specific double membrane bioreactor.....	178
V.3.2 Bilan.	188
<i>V.4 Performances de filtration du module en mode Externe/Interne.</i>	<i>189</i>
V.4.1 Flux net : comparaison des deux modes de filtration.....	190
V.4.2 Influence de la composition du fluide sur l'évolution des différentes résistances de colmatage au cours du temps.....	192
<i>V.5 Performances de filtration lors de l'utilisation du module 1400 fibres.</i>	<i>197</i>
V.5.1 Flux net de perméat en fonction du sens de filtration.	197
<i>V.6 Comparaison et conclusion</i>	<i>206</i>
 Chapitre VI : Confrontation « simulations/ approche expérimentale », discussion.	 209
<i>VI.1 Prise en compte de la formation du dépôt et du cycle de rétrofiltration.....</i>	<i>211</i>
VI.1.1 Evaluation de l'impact de la compacité sur un cycle entier filtration/rétrofiltration.....	211
<i>VI.2 Application aux milieux biologiques réels.....</i>	<i>216</i>
VI.2.1 Filtration d'un milieu de culture de <i>Yarrowia lipolytica</i> en phase stationnaire de culture : Evaluation des performances du pilote en conditions semi réelles.	216
<i>VI.3 Impact du dépôt sur le temps d'homogénéisation.</i>	<i>221</i>
<i>VI.4 Conclusions.</i>	<i>223</i>
 Conclusion générale.	 225
 Annexes.....	 231

Introduction générale.

La plupart des micro-organismes de la nature ne se développent pas de manière isolée mais en association avec d'autres espèces et souvent, d'autres sous-espèces ou souches de la même espèce. Autrement dit, les micro-organismes se comportent en tant que populations, ou assemblage d'organismes similaires, et en tant que communautés, ou mélanges de populations microbiennes différentes. Au sein de ces systèmes, les micro-organismes entretiennent des relations complexes (commensalisme, symbiose, amensalisme, prédation, etc.) qui conduisent à un équilibre, sous contrôle des conditions environnementales. Ces relations sont étroitement liées au mode de communication qui peut être direct, par contact physique, ou indirect, par l'intermédiaire de molécules signal. La compréhension du fonctionnement de ces écosystèmes de manière qualitative et quantitative, et en particulier l'identification et l'étude des mécanismes qui gèrent les interactions entre espèces est l'un des pans essentiels de l'écologie microbienne. En effet, une meilleure compréhension des interactions permettra de mieux les maîtriser et d'optimiser les cultures microbiennes par exemple en les exploitants si ces interactions sont bénéfiques.

Ces interactions microbiennes complexes ont été mises à profit par l'homme de façon empirique depuis des générations dans la production du vin, de la bière, de fromage et d'autres produits fermentés. L'apparition de la microbiologie a ensuite permis de transformer ce savoir traditionnel en procédés maîtrisés, isolant les différents micro-organismes en cause et permettant ainsi le développement de nouvelles méthodes de production qui mettent en œuvre une seule population de micro-organismes. Les avantages nombreux de ces cultures pures et, en particulier, le contrôle amélioré de la qualité du produit, ont conduit nombre d'industries à privilégier ce type de culture. Ainsi, en microbiologie industrielle, le développement d'un nouveau procédé commence souvent par l'isolement du micro-organisme ou de la souche capable de réaliser la transformation recherchée. Dans le but d'optimiser les performances de production, une grande partie des recherches se sont focalisées sur l'étude du comportement physiologique des cultures pures, négligeant souvent l'étude des cultures mixtes dont l'importance dépasse cependant le contexte écologique.

En effet, la contamination d'une fermentation par un micro-organisme peut modifier l'issue du procédé et la compréhension de l'implantation du contaminant au sein d'un environnement où il existe déjà une population (ou une population mixte). Ce cas extrêmement intéressant est celui de l'utilisation de substrat non stériles (Ex : vinification). D'autre part, lorsque des cultures mixtes sont effectivement mises en œuvre (produits laitiers, salaisons, traitement des eaux usées, etc.), une compréhension accrue des mécanismes d'interactions permettrait de tendre vers l'amélioration rationnelle des procédés les exploitant et de proposer le développement de technologies à cultures hétérogènes. Ceci permettrait des transformations plus complexes ou plus performantes que celles effectuées en cultures pures (ex : traitement des eaux usées).

En dépit de toutes ces raisons, la principale cause du nombre restreint d'études portant sur les cultures mixtes est le manque de techniques de mesure simple et précise pour quantifier les populations en présence ainsi que la dynamique de leurs interactions, élément essentiel à l'étude quantitative. Dans la plupart des travaux, les méthodes utilisées pour accéder à l'information désirée sont souvent coûteuses, fastidieuses et sujettes à d'importantes erreurs.

Salgado *et al.* ont proposé, en 1998, une stratégie originale reposant sur un double bioréacteur couplé à des membranes pour l'homogénéisation de deux milieux liquides contenant des micro-organismes différents. L'idée de base est de permettre à deux souches de partager le même environnement tout en les maintenant séparées à l'aide d'une membrane perméable retenant sélectivement les micro-organismes. Ainsi, des prélèvements distincts sont possibles dans chaque bioréacteur et l'étude de chaque population est aussi aisée et précise que dans le cas d'une culture pure. Le pilote a donc été élaboré afin de permettre des vitesses de mélange élevées et inférieures aux cinétiques biologiques considérées.

Cette thèse s'inscrit dans la continuité immédiate des travaux de Salgado *et al.* (1998). Sur la base des choix de configuration proposés dans cette étude, et afin de tendre vers une optimisation rationnelle de l'utilisation de ce dispositif, ce travail s'attachera à approfondir la connaissance des mécanismes mis en jeu lors de la filtration en fonction des conditions opératoires et des caractéristiques géométriques du module de filtration. Dans cet objectif, l'étude s'appuiera sur l'utilisation d'outils de mécanique des fluides numérique complétée par une approche expérimentale menée dans des conditions modèles. Ce manuscrit est divisé en 6 parties :

- Le chapitre I situe la problématique des cultures mixtes de micro-organismes et la difficulté de leur étude. La stratégie de conception du double bioréacteur à membranes en tant qu'outil d'étude des cultures mixtes est présentée ainsi que les choix technologiques initialement faits. La problématique du colmatage, commune à toute opération de filtration, et au cœur du fonctionnement du procédé est ensuite détaillée avec un intérêt particulier sur les moyens d'y remédier. Finalement, l'apport de la mécanique des fluides numérique dans l'étude de la filtration membranaire est décrit.
- Le chapitre II expose le matériel et les méthodes mis en œuvre dans ce travail. Les spécificités techniques du double bioréacteur à membranes mis en œuvre pour cette étude, ses différences par rapport à l'outil de base précédemment décrit, les fluides modèles choisis ainsi que les analyses effectuées sont ainsi détaillés. Les méthodes d'exploitation des résultats expérimentaux utilisées dans la suite de l'étude sont également explicitées.

- Le chapitre III traite de l'approche par simulation, en s'appuyant sur des outils de mécanique des fluides numérique, des performances de filtration du module, en fonction du sens de filtration et de la compacité des fibres dans le module. Ce chapitre comporte une première partie, présentée sous forme de publication soumise à *Journal of Membrane Science* dans laquelle l'impact du confinement des fibres creuses sur les vitesses de filtration le long de la fibre est évalué, par une approche modèle en 2 Dimensions. Trois compacités différentes sont envisagées et comparées, puis confrontées à des performances de filtration expérimentale. Dans une deuxième partie, un modèle numérique 3D, plus réaliste, est décrit et les résultats des simulations réalisées sont comparés à ceux précédemment obtenus avec le modèle 2D.
- Le chapitre IV est dédié à l'étude de la construction du dépôt par une approche numérique. Il montre ainsi l'importance de la compacité des fibres dans le module sur la formation et la localisation du dépôt le long de la fibre. Ce chapitre est présenté sous forme de publication soumise à *Chemical Engineering Research and Design*. Dans cet article, reprenant la base du modèle présenté dans le chapitre III, la formation et la répartition spatiale du dépôt le long de la fibre en fonction de la compacité et du sens de filtration est évaluée et discutée.
- Le chapitre V présente l'approche expérimentale qui a pu être réalisée et s'attache à décrire l'influence des conditions de mise œuvre sur les performances de filtration du pilote. Cette partie expérimentale a donné lieu à un article publié dans la revue *Chemical Engineering and Processing* qui décrit les performances de filtration d'un module de forte compacité utilisé en filtration externe/interne dans le cas de fluides biologiques modèles. Une analyse de l'influence du sens de filtration et de la compacité dans le cas de fluides modèles a par la suite été réalisée. L'ensemble des résultats expérimentaux permet de réaliser, en fin de chapitre, une comparaison générale des deux modules de filtration de compacités différentes.
- Enfin, une confrontation et une comparaison générale des données numériques et expérimentales sont réalisées dans le chapitre VI afin de proposer une interprétation des phénomènes principaux régissant les transferts dans le double bioréacteur à membranes. Une partie de ce chapitre est consacrée également à la filtration de milieux de culture réels afin de discuter de la mise en œuvre du pilote en conditions de culture de micro-organismes.

Enfin, les principaux résultats obtenus au cours de cette thèse et les perspectives de travail envisagées sont synthétisés dans une conclusion générale.

Chapitre I : Synthèse bibliographique

I.1 Contexte et enjeux scientifiques.

I.1.1 Les cultures mixtes.

La problématique des cultures mixtes est la suivante : le devenir d'un substrat sous l'action de micro-organismes multiples dépend non seulement du comportement de chacun d'eux vis-à-vis du milieu, mais également des interactions qui existent entre ces différents micro-organismes. Ces interactions sont de nature indirecte, c'est-à-dire qu'elles ne mettent pas en jeu un contact physique entre les individus, mais se font par l'intermédiaire du milieu de culture.

Une des approches de l'étude quantitative d'une dynamique de cultures des micro-organismes passe par la caractérisation des facteurs limitant leur croissance dans un milieu bien défini. Il faut donc être capable :

- d'évaluer l'ampleur et la cinétique des processus tels que la croissance, la consommation de substrats, la production des métabolites, la mort cellulaire, et tout autre phénomène méritant un intérêt,
- d'identifier et quantifier les solutés modifiant la vitesse ou le rendement de la croissance.
- et de quantifier l'influence des solutés prépondérants sur la vitesse de croissance ou le rendement lors du déroulement de la fermentation [8].

Une population mixte peut être composée de deux ou plusieurs populations de microorganismes. Par soucis de simplification, la présente étude est centrée sur le développement et l'optimisation d'une population mixte modèle composée uniquement de deux souches.

I.1.2 Particularité des cultures mixtes.

Dans l'étude des populations mixtes, la différenciation de deux micro-organismes peut se réaliser par leur différence de taille, de forme et d'aspect à l'aide d'outils optiques tels que le microscope. Cette différenciation peut également se faire en utilisant la technologie laser avec les cytomètres de type Coulter. La distinction de micro-organismes semblables en microscopie optique, est réalisée par étalement sur boîtes : un faible volume de la suspension de cellules est étalé sur un milieu nutritif

solide. Les cellules sont ainsi séparées les unes des autres, et forment des colonies. La procédure est longue et imprécise :

- Les colonies formées peuvent provenir de plus d'une cellule et ce type de groupement est commun chez les levures bourgeonnantes, les staphylocoques et autres structures pluricellulaires stables. Cette première source d'erreur est inévitable.
- L'exactitude de l'estimation de la proportion de chaque souche dépend du nombre de cellules ou de colonies identifiées. Cette seconde source d'erreur peut être minimisée mais dans le but d'obtenir une bonne précision lors de la détermination de la proportion d'une population mixte à partir d'un échantillon, il est nécessaire d'analyser des centaines ou des milliers de colonies pour avoir une précision convenable [8] [9] [10].

L'étude d'une culture mixte passe par une compréhension des mécanismes d'interactions entre les différents micro-organismes, par une identification des acteurs jouant dans cette relation, et par leurs mesures quantitatives et qualitatives. Le double bioréacteur à membranes immergées proposé par Salgado *et al.* implique une séparation des souches et permet l'étude des cultures mixtes où les interactions sont indirectes, c'est-à-dire par l'intermédiaire de solutés ou macrosolutés présents dans le milieu commun aux différentes populations. La séparation des deux types de micro-organismes est effectuée par un module de microfiltration qui est, à la fois le cœur de ce procédé innovant, mais aussi son étape limitante.

I.2 Outil d'étude : Le double bioréacteur à membranes.

I.2.1 Outils de séparation membranaire couplés à la culture microbienne.

La découverte des potentialités de biotransformation des micro-organismes a permis, depuis le siècle dernier, de développer des secteurs axés sur les produits de cultures cellulaires : production d'antibiotiques, production de biocarburants, production de ferments pour la vinification, etc.

L'amélioration des performances des fermentations nécessite la connaissance du composé que l'on désire produire, tout autant que son mécanisme de synthèse qui permet d'optimiser la conduite de la culture. L'étude physiologique et la nécessité d'éliminer les déchets toxiques issue du métabolisme de certains micro-organismes a permis l'émergence, dans les années 60, puis plus largement dans les années 70, d'une stratégie particulière de culture, assurant des conditions de cultures optimales. Un bioréacteur à membranes combine un réservoir où la réaction biologique se déroule et une membrane qui sépare l'endroit de la réaction de l'extérieur.

Gerhart et Gallup furent les premiers chercheurs à mettre en œuvre un dispositif combinant une membrane et un bioréacteur [3] en mettant en pratique un système d'élimination par dialyse des substances toxiques contenues dans le milieu nutritif lors d'une fermentation. Ainsi, comparativement à une culture sans dialyse, la concentration en biomasse d'une culture de *Serratia marcescens* a été augmentée d'un facteur 10.

Deux avantages peuvent donc être distingués.

- Premièrement, la rétention des cellules au fur et à mesure de leur croissance permet une concentration de micro organismes actifs très élevée. Ainsi lors d'un couplage bioréacteur – fibres creuses, de très hautes densités cellulaire sont obtenus : 1.10^{12} cellules.ml⁻¹ pour *E. coli* 600 [11] et jusqu'à 350 g.L⁻¹ pour *L. delbrueckii* [12].

- Deuxièmement, en mode de fonctionnement continu, les bioréacteurs à membranes permettent une meilleure maîtrise des conditions d'environnement cellulaire [3].

Néanmoins, certains inconvénients sont à relever. Ainsi, les hautes densités cellulaires conduisent au blocage de certaines fibres, voir même à leur casse et induisent des chutes de productivité spécifique, particulièrement en raison de problème de diffusion des nutriments et des déchets issus du métabolisme. Ainsi, les difficultés opérationnelles les plus souvent rapportées sont

liées à un phénomène d'accumulation de particules et/ou de macrosolutés et solutés sur et/ou dans la membrane. Ce phénomène nommé colmatage sera défini et discuté plus tard dans cette synthèse bibliographique.

La mise en œuvre d'un bioréacteur à membranes dépend de l'application particulière visée. En effet, une membrane peut être exploitée de plusieurs façons et différentes membranes peuvent être utilisées. Actuellement, la plupart des applications utilisent les membranes comme moyen de retenir les cellules, tout en récupérant les produits ou en enlevant les substances inhibitrices. On peut également citer l'utilisation des membranes lors de l'introduction de façon stérile des substrats peu solubles comme l'oxygène ou une alimentation de substrats perfusés. La capacité de ces réacteurs pour confiner le catalyseur, tout en permettant le soutirage, est particulièrement appréciée lorsqu'il s'agit d'enzymes.

Les bioréacteurs à membranes peuvent être classés en deux groupes [13]. Dans le premier, la membrane est utilisée pour retenir le catalyseur se trouvant en suspension libre dans le réacteur. Le deuxième groupe rassemble les systèmes où la membrane est utilisée pour immobiliser le catalyseur en surface, dans sa matrice ou entre deux membranes [8]. Nous nous intéresserons plus spécifiquement aux configurations simples de la première catégorie.

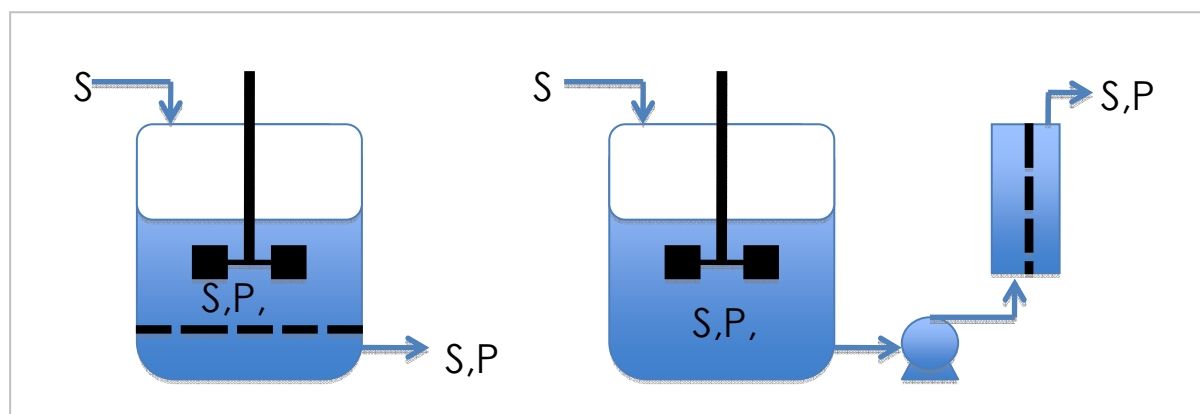


Figure I-1. Deux configurations de réacteur à membranes. S indique les substrats, C le catalyseur et P les produits.

La Figure I-1 présente les deux configurations de réacteur à membranes. La cellule de filtration (Figure I-1 gauche) est la configuration la plus simple d'un réacteur à membranes. Une membrane plane est disposée au fond du réacteur permettant de récupérer le ou les produits souhaités. Néanmoins, cette configuration est des moins intéressantes à cause du colmatage. Aussi, afin de limiter ce phénomène de colmatage, un circuit fermé entre le réacteur et le module de filtration permettant d'apporter le milieu réactionnel tangentiellément à la membrane est installé

(Figure I-1 droite). Ce procédé permet au catalyseur de rester dans le système alors qu'une partie du solvant et des solutés, auxquelles la membrane est perméable, sont récupérés par filtration.

Le choix des membranes reste un élément clef dans la conception d'un procédé liant fermentation et séparation. La microfiltration est la plupart du temps utilisée et la taille des pores des membranes varie de 0,1 à 0,4 μm . Différents types (composition, structure) et une grande variété de configurations de membranes ont été utilisés dans les BAM. Elles incluent en fonction de la composition et de la structure les membranes polymères organiques (polyéthylène PE, polyéthersulfone PES, polysulfone PS, polyoléfine PO, etc.), métallique, et inorganique (céramique) et en fonction de la configuration, les membranes tubulaires, planes, les disques rotatifs, les fibres creuses, etc.

Reste à souligner que le transfert de solutés à travers la membrane peut avoir lieu par filtration et/ou par diffusion. Ce dernier phénomène est trop lent pour la plupart des applications et requiert un volume de solvant trop important pour être efficace [14]. Pour cette raison, la plus grande majorité des bioréacteurs à membranes actuels utilisent le transfert par convection, c'est-à-dire la filtration.

I.2.2 Le double bioréacteur à membranes immergées DBAMI: outil dédié à l'étude des cultures mixtes.

I.2.2.1 Objectif et concept de base.

L'objectif de la thèse de Salgado [14] était la mise au point d'un bioréacteur à membranes pour l'étude des dynamiques de populations mixtes de micro organismes. L'intérêt d'un tel réacteur était suscité par les difficultés pratiques rencontrées lors des études des cultures mixtes, pour suivre l'évolution des biomasses de différentes souches contenues dans la population. En effet, les méthodes nécessaires sont longues, chères, peu précises et fastidieuses.

La démarche retenue reposait sur 3 principes fondamentaux :

- Le premier principe est la séparation des micro-organismes par l'intermédiaire d'une membrane qui les retient en totalité. En effet, pour s'affranchir des problèmes liés à l'identification des souches en co-culture, les différents micro-organismes du mélange doivent être séparés mais soumis exactement au même environnement.

- Le second principe découle directement du premier. Pour permettre à chaque instant t un environnement dispersant identique, le transfert des molécules d'intérêt d'un compartiment à l'autre est obligatoire : la membrane doit donc être perméable à ces composés.
- Enfin, le dernier principe repose sur les considérations de vitesses de transfert de ces solutés. Afin que ce transfert ne soit pas limitant pour la réaction biologique, les vitesses de transfert des molécules d'intérêt doivent être très supérieures aux vitesses réactionnelles dans lesquelles sont impliqués ces solutés.

I.2.2.2 Principales contraintes.

L'objectif majeur de l'utilisation de ce pilote est l'homogénéisation entre les différents compartiments qui composent le réacteur. En effet, la simple séparation des souches par l'intermédiaire de la membrane permet à l'interaction d'avoir lieu mais, pour que les informations ainsi obtenues soient applicables à une étude quantitative, il faut que les souches soient soumises à un même environnement. Cela n'est possible qu'en assurant une vitesse de transfert des solutés entre les réservoirs plus importante que les vitesses réactionnelles dans lesquelles sont impliqués ces solutés. Autrement dit, il est nécessaire que le déroulement global des fermentations soit contrôlé par les vitesses de réaction et non par le transfert des solutés.

En effet, l'influence des écarts de concentration sur la dynamique est primordiale pour une étude quantitative des interactions. Cette influence est conditionnée par les temps de réponse du micro-organisme, qui dépendent des temps de relaxation des mécanismes par lesquels le micro organisme répond aux changements dans son environnement. Les intervalles typiques sont reportés sur la Figure I-2.

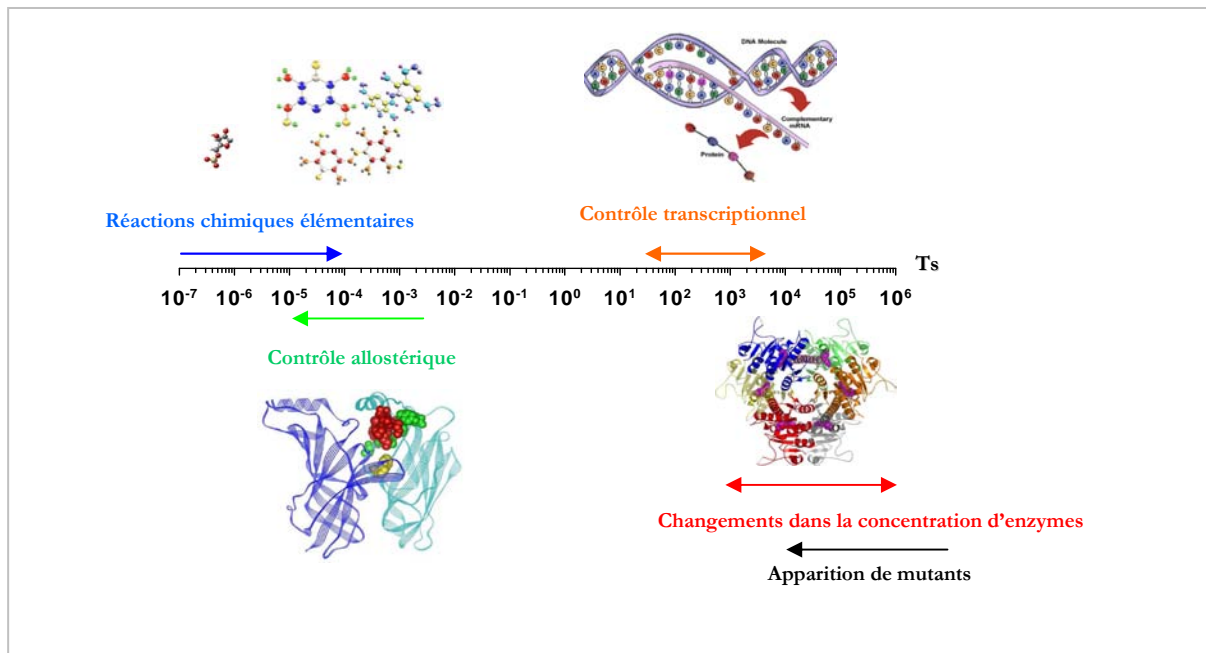


Figure I-2. Temps caractéristiques des réponses biologiques importantes en ingénierie des bioréacteurs [1].

Définitions:

Le contrôle allostérique se fait par une molécule dite effecteur allostérique, qui va se lier à une enzyme sur un site différent de son site actif, modifiant ainsi sa structure et donc son activité. Cette interaction est très rapide et temporaire.

Le contrôle transcriptionnel s'opère à l'étape de transformation de l'ADN en ARN et peut s'effectuer sur les étapes d'initiation, d'élongation et de terminaison.

Les mutants sont des micro-organismes ayant subi une modification irréversible de l'information génétique et héréditaire dans la séquence d'un génome (ADN ou ARN).

Trois types de relations entre le temps de relaxation et les modifications de l'environnement sont à distinguer :

- Lorsque les changements dans l'environnement sont très rapides par rapport au mécanisme de réponse, les variations ne modifient pas le comportement du micro organisme.

- Les changements dans l'environnement sont lents comparés à la vitesse d'adaptation du mécanisme. L'organisme se comporte alors comme s'il avait atteint l'état stationnaire dans cette condition environnante particulière car le mécanisme est complètement adapté. La dynamique d'adaptation n'est pas importante puisque l'état du mécanisme peut être estimé à partir des conditions environnantes.
- Enfin, si les vitesses de relaxation du mécanisme et les changements dans l'environnement sont comparables, l'état du mécanisme n'est pas lié directement aux conditions environnantes considérées. La cinétique d'adaptation du mécanisme doit être considérée.

Ces trois points considérés, le temps de mélange du réacteur devrait être inférieur au temps du mécanisme par lequel l'organisme répond aux variations de concentration d'un soluté particulier. Ainsi, l'écart de concentration entre les deux bioréacteurs serait supprimé avant que le micro-organisme ne modifie son métabolisme. En considérant les temps de relaxation reportés sur la Figure I-2, cela peut s'avérer très difficile.

Un dispositif qui exploite la même idée appelé Ecologen est commercialisé par New Brunswick Scientific. Cependant, l'application de ce système est limitée à cause des faibles vitesses de mélange entre ses réservoirs. En effet, il met en œuvre un transfert diffusif qui est très lent et qui affecte alors le dynamisme de l'interaction.

Dans le cadre du travail de thèse d'Edgar Selgado [8, 14] plusieurs autres prototypes ont été proposés, tous fondés sur un transfert de solutés par convection entre deux réservoirs séparés par une membrane. Les systèmes à circulation par pompes ou par surpression et à membrane plane ont été abandonnés mettant en évidence des besoins en transfert bien plus importants que la théorie ne le nécessitait. En effet, l'étude a montré des performances limitées d'une part par le colmatage et d'autre part par le volume mort. L'amélioration des performances est passée par une augmentation de la surface membranaire. Cependant, pour des surfaces fixées, envisageables dans un module à membranes plane sans augmentation trop importante du volume mort, les performances sont restées limitées. Le système par surpression à fibres creuses fut donc retenu par Salgado, permettant de produire l'augmentation de surface désirée sans une augmentation significative du volume mort. Ce choix a été finalement très pertinent car il démontrait des performances, en termes de transfert, nettement supérieures aux prototypes précédemment cités.

Concernant la réaction biologique, l'accumulation de biomasse et de substances organiques issues du métabolisme cellulaire peuvent donner lieu à des limitations nutritionnelles ou des inhibitions, et ainsi perturber l'activité et la viabilité des microorganismes [15].

D'un point de vue physico-mécanique, il existe également des limitations liées aux concentrations élevées en biomasse et /ou en produits extra-cellulaires (substances exo-polymères EPS) qui agissent sur les caractéristiques physiques du milieu de fermentation : mauvais mélange [5], viscosité, tension superficielle, taille du dispersé [16].

Un certain nombre de limitations sont directement liées au procédé de séparation par membranes. En effet, deux caractéristiques doivent être considérées : l'efficacité de la séparation et le débit de perméat. Dans le cas du DBAM, les membranes ont pour rôle essentiel de séparer la phase liquide de la biomasse : le choix d'une membrane à seuil de coupure adapté ne pose *a priori* pas de problème (0,1 μm). Le débit de perméat est quant à lui, le paramètre essentiel car il conditionne le taux de renouvellement du milieu (taux de dilution admissible). Dans le cadre d'une fermentation couplée à un procédé de séparation, les paramètres influençant le flux de perméat sont :

- l'adsorption de la biomasse ou des molécules organiques dans les pores de la membrane (colmatage interne) et/ou sous forme d'un dépôt sur la surface de la membrane (colmatage externe),
- le régime d'écoulement,
- la pression transmembranaire (PTM),
- la viscosité du solvant.

Le phénomène d'adsorption résulte essentiellement des interactions de surfaces entre la membrane et les molécules ou particules contenues dans le milieu à filtrer. De nombreux travaux dédiés, par exemple, à la séparation des protéines [17-20], ont montré l'importance de ce phénomène sur l'intensité du flux de perméat et l'intérêt d'adapter le type de membrane utilisé (matériau, seuil de rétention) au produit concerné.

Pour limiter l'adsorption, deux techniques ont été proposées. La première consiste à modifier les caractéristiques de surface de la membrane par sa fonctionnalisation [21]: cette technique ne sera efficace que si le milieu à filtrer ne contient qu'un type de molécules bien identifiées. La seconde consiste à modifier de façon transitoire le pH du milieu à filtrer afin de dissoudre les composés organiques précipités sur la surface [22].

Lors des fermentations réalisées en BAM, caractérisées par une composition très complexe des moûts, l'apparition du colmatage est très rapide. Le flux de perméat à PTM constante montrant une très forte décroissance initiale [5] pouvant atteindre 50% de sa valeur initiale pendant les premières heures de filtration et se poursuit pendant les heures suivante (Figure I-3).

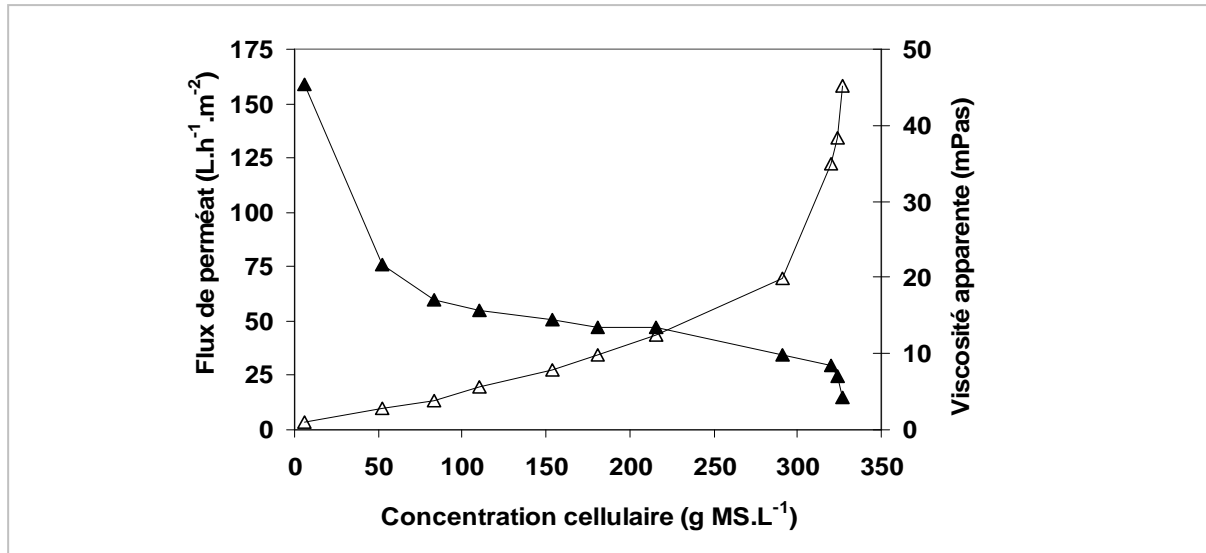


Figure I-3. flux de perméat et viscosité apparente du milieu en fonction de la concentration totale en biomasse (MS) en fermentation alcoolique en bioréacteur à membranes (concentration glucose du milieu de 150 g.L⁻¹, taux de dilution hydraulique 0,55 h⁻¹) [5].

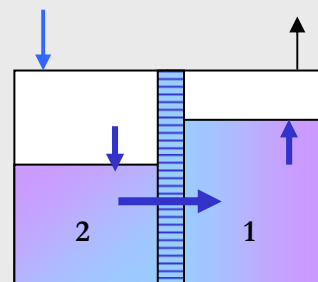
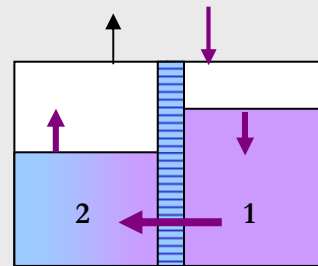
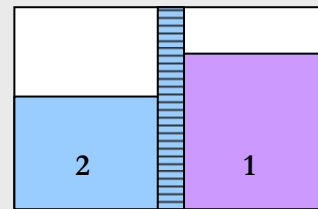
Les solutions proposées pour limiter les dépôts d'origine physique sont nombreuses, parmi celles-ci, on peut distinguer les méthodes basées sur un mode de conduite spécifique. On peut citer, outre les procédures annulant périodiquement la pression transmembranaire et donc le flux convectif vers la membrane (fermeture du circuit perméat ou arrêt de la pompe de circulation), la création transitoire d'un flux inverse ("back-flush") qui présente l'intérêt potentiel d'agir à la fois sur les colmatages interne et externe. Ces méthodes ne sont pas très intéressantes du point de vue de la valeur du flux moyen de perméat (périodes de flux nul ou inverse), mais permettent cependant de maintenir un bon niveau de flux sur une longue période de fonctionnement. En d'autres termes, l'état de la membrane autorisait un flux malgré tout adapté à un fonctionnement sur une longue période.

I.2.2.3 Principe du DBAMI.

L'encadré ci-dessous résume en 3 points les étapes d'un cycle de filtration/rétrofiltration du double bioréacteur à membranes.

Le fonctionnement du pilote dans cette configuration peut se diviser en 3 étapes décrites et schématisées ci-dessous :

- **Etat initial ($t=0$) :** le dispositif expérimental est rempli du fluide à traiter par l'intermédiaire d'une ouverture située sur la partie supérieure de chaque bioréacteur.
- **$0 < t < t_0$:** mise sous pression de 1 et mise à la pression atmosphérique de 2, l'air comprimé chasse le liquide à travers la membrane 1->2, rétention des micro-organismes dans 1.
- **$t_0 < t < t_0+t_f$:** mise sous pression de 2 et mise à la pression atmosphérique de 1, l'air comprimé chasse le liquide à travers la membrane 2->1, rétention des micro-organismes dans 2.



Résumé:

Un bioréacteur à membranes combine un réservoir permettant de réaliser les transformations et réactions biologiques souhaitées et une membrane qui permet la rétention sélective des microorganismes. Cette capacité de séparation ou filtration in situ a été utilisée dans une étude antérieure pour concevoir un procédé permettant l'homogénéisation de deux milieux liquides ou culture pures, contenant des micro-organismes pour l'étude des interactions microbiennes.

Un certain nombre de contraintes spécifiques liées à la croissance d'un micro-organisme en milieu liquide et soumis à une filtration sont à prendre en compte. La croissance cellulaire, la mort cellulaire, la consommation de substrat, l'excrétion de produits (polysaccharide, protéines, etc.) confèrent au milieu biologique un caractère particulièrement évolutif et participent activement au colmatage des membranes de filtration. Aussi, afin de développer un peu plus la réflexion, la suite de cette synthèse bibliographique aura pour objet la filtration membranaire et sur ses limitations.

I.3 Présentation générale de la filtration membranaire.

Le but d'une opération de filtration est la séparation d'une phase continue (liquide ou gazeuse) et d'une phase dispersée (solide ou liquide), initialement mélangées. Dans le but d'illustrer au mieux cette thèse, la filtration phase continue liquide – phase dispersée solide sera uniquement présentée.

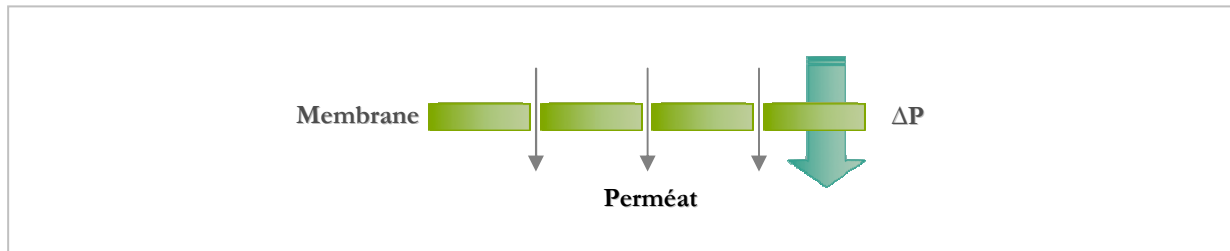


Figure I-4. Schéma du principe général de la filtration par membrane par gradient de pression.

Afin de permettre à la suspension de traverser le filtre, il est nécessaire de fournir une certaine énergie. Le gradient de pression imposé de part et d'autre des faces d'une membrane joue ce rôle d'énergie car au final une pression n'est autre que l'énergie transférée au fluide par unité de volume.

I.3.1 Classification des procédés membranaires.

Par définition, une membrane est une barrière sélective de quelques centaines de nanomètres à quelques millimètres d'épaisseur, qui sous l'effet d'une force de transfert, va permettre ou interdire le passage de certains composants entre deux milieux qu'elle sépare. Différents procédés de séparation sur membrane peuvent être distingués en fonction des forces de transfert mises en œuvre (gradient de pression, de concentration, d'activité ou de potentiel électrique). Ainsi, les membranes permettent de traiter une grande variété de fluides contenant des espèces allant des ions ou des sels (osmose inverse) à la filtration conventionnelle (filtre à sable) permettant de séparer des objets de la taille d'un cheveu (50 à 100 μm) (Figure I-5). La technique utilisée dans cette thèse est la microfiltration qui permet de filtrer des micro-organismes de taille supérieure au dixième de micromètre.

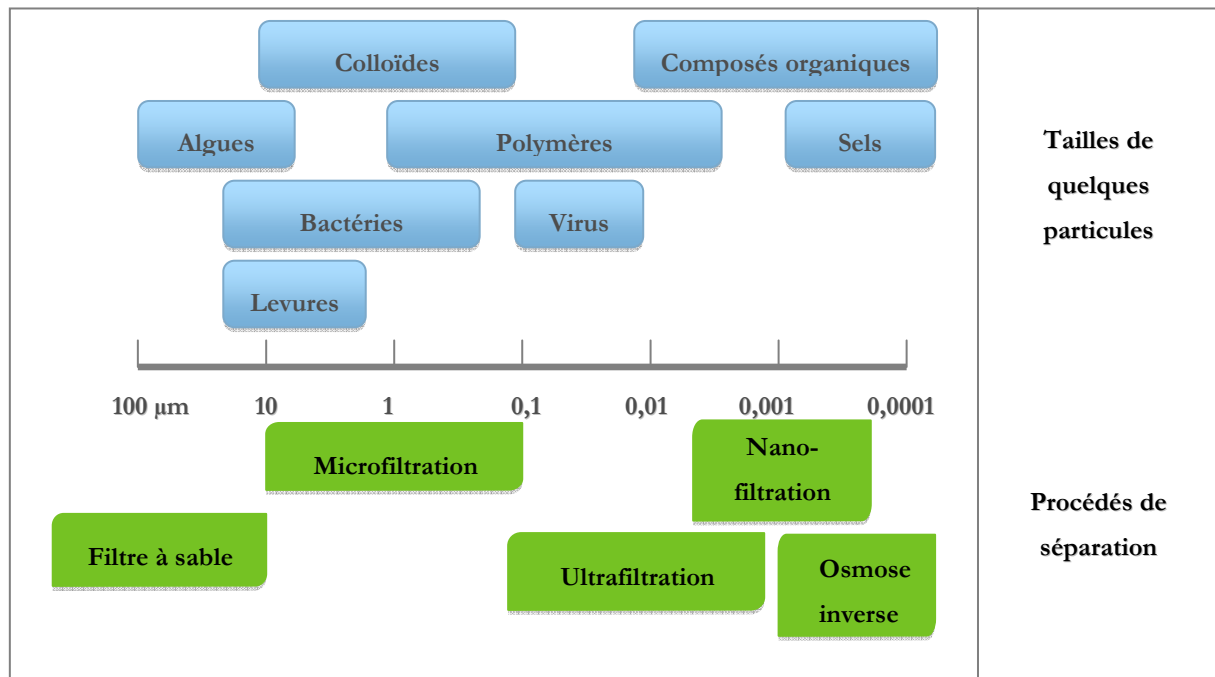


Figure I-5. Utilisation de différentes membranes vis-à-vis des tailles des éléments [23].

I.3.2 Modes de fonctionnement.

La filtration membranaire peut être réalisée selon deux modes de fonctionnement principaux. Le mode frontale (dead-end) ou la filtration tangentielle (cross-flow). Ces deux modes opératoires correspondent à des approches et des applications différentes.

I.3.2.1 Filtration frontale.

La filtration frontale est utilisée largement en purification dans l'industrie pharmaceutique, par exemple dans les cartouches de microfiltration stérilisantes ou dans l'industrie micro-électronique pour éliminer les particules présentes dans les eaux de rinçage. Cette technique est aussi retrouvée pour des applications biomédicales spécialisées, un certain nombre d'outils de séparation de petite échelle de laboratoire, et en traitement de l'eau (potabilisation et traitement des eaux usées). Le principe réside dans la filtration de la solution perpendiculairement à la surface de la membrane. Sa présence assez répandue dans l'industrie réside dans les faibles investissements requis pour sa réalisation et ses coûts énergétiques peu élevés comparés à la filtration tangentielle présentée dans la section suivante. Ce procédé n'atteint jamais un état stationnaire et ne permet la filtration de solution que faiblement colmatantes relativement à l'application considérée. En effet, le mode frontal

induit une accumulation de toutes les particules sur la surface membranaire proportionnellement au débit, induisant des débits de perméat trop faibles lors la filtration de solution fortement chargées (fortement colmatantes) (Figure I-6).

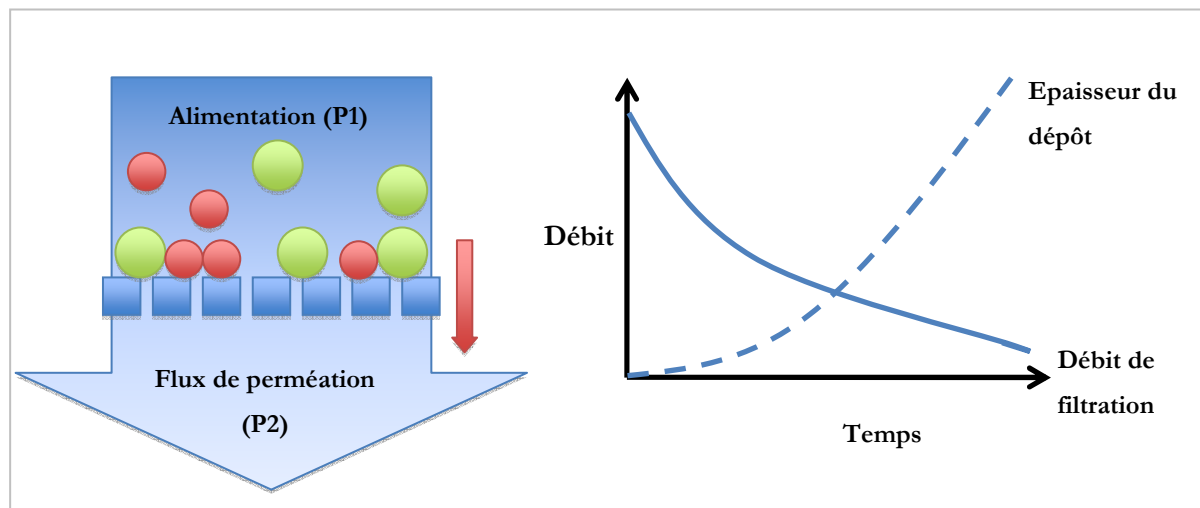


Figure I-6. Gauche: Schéma de fonctionnement de la filtration frontale ; Droite: Evolution du débit et de l'épaisseur du dépôt en fonction du temps.

La pression transmembranaire est déterminée par différence entre la pression P_1 en entrée du module s'appliquant sur la membrane et P_2 la pression en sortie du module :

$$PTM = P_1 - P_2$$

Équation I-1

I.3.2.2 La filtration tangentielle.

Afin d'obtenir des taux élevés de transfert de masse, il est nécessaire de contrôler / atténuer l'accumulation qui limite le transfert. Cela est rendu possible par l'imposition d'une circulation du fluide tangentiellement à la membrane (cisaillement) et/ou de turbulence dans l'environnement immédiat de la membrane [23]. Ceci est obtenu grâce au mode de filtration tangentielle dans lequel l'écoulement du liquide est parallèle à la membrane et perpendiculaire au flux de filtration. Le design d'un système tangentielle est de ce fait plus complexe que celui d'un système frontal et requiert de prendre en compte trois différents éléments : la solution d'alimentation, le perméat et le retentât. En filtration tangentielle le dépôt formé des espèces de la solution d'alimentation arrivant près de la membrane met un certain temps à se construire du fait de l'écoulement du fluide de vitesse moyenne V . Le flux décroît puis se stabilise dans un état stationnaire (Figure I-7).

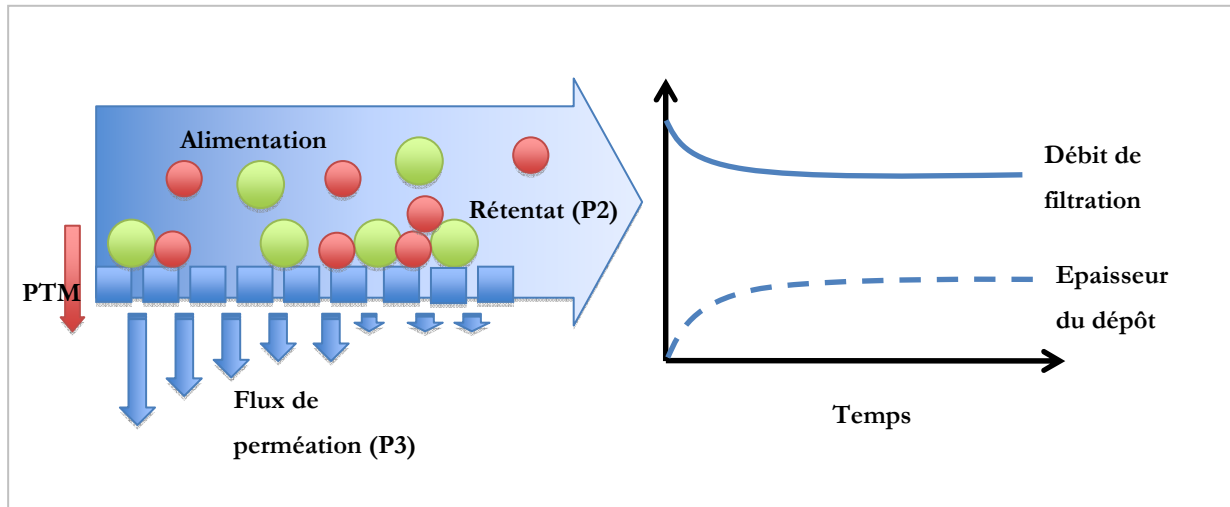


Figure I-7. Gauche: Schéma de principe de la filtration tangentielle ; Droite : Evolution du débit et de l'épaisseur du dépôt en fonction du temps.

Dans le cas de la filtration tangentielle, la pression transmembranaire est calculée de la façon suivante :

$$PTM = \left(\frac{P_1 + P_2}{2} \right) - P_3 \quad \text{Équation I-2}$$

avec P_1 la pression en entrée de module s'appliquant sur la membrane, P_2 la pression de sortie de module (relié à P_1 par la perte de charge dans le module) et P_3 la pression dans le compartiment retentât généralement égale à la pression atmosphérique.

I.3.2.3 Fonctionnement à flux constant ou à pression constante.

La filtration a précédemment été décrite comme un phénomène de transfert engendré par l'application d'une pression sur le liquide de part et d'autre de la membrane. Le gradient de pression peut être généré par le fonctionnement d'une pompe installée côté perméat, faisant circuler le liquide au dessus (mode tangentielle) ou à travers la membrane (mode frontal). Le débit de perméat peut être régulé et constant, le fonctionnement est donc à flux constant. Le gradient de pression peut être également généré par l'application d'une pression barométrique en surface du liquide à traiter. Dans le cadre de cette thèse, ce mode de fonctionnement est choisi par les contraintes inhérentes au pilote.

I.3.3 Matériaux et configuration des modules de filtration.

Le choix des matériaux permettant la filtration sur membrane est assez large et comprend deux grandes familles : les membranes organiques (80 à 90 % de la surface mondial installée) et les membranes minérales. Toutefois en raison des normes d'hygiène exigées, notamment dans les industries agro-alimentaire, les membranes minérales y occupent une place importante car elles autorisent des conditions plus drastiques de nettoyage et de stérilisation [3]. Les membranes organiques sont par nature moins résistantes à la température, aux pH extrêmes et aux hautes pressions. Néanmoins, elles sont moins onéreuses et permettent une mise en forme et des configurations plus variées, pour des applications spécifiques. Cette partie se focalisera sur les matériaux polymères retrouvés en microfiltration et sur les configurations de modules, laissant une place importante aux modules à fibres creuses, configuration choisie pour le pilote.

I.3.3.1 Membranes polymériques.

Les membranes de filtration les plus utilisées sont à base de polysulfone, de polyethersulfone ou bien de polyfluorovinyldiène (PVDF). Des membranes à base de polypropylène, oxyde de polyphénylène, polycarbonate, de polyamides et des esters de cellulose sont également disponibles. Le plus grand nombre de ces polymères voient leur composition en monomères modifiée (copolymère) ou possède des fonctions chimiques greffées, leur conférant de nouvelles propriétés de surface ou de rétention. La modification chimique la plus connue est la sulfonation des polysulfones permettant d'améliorer le flux de perméation avec le degré de sulfonation [3]. La sulfonation permet de charger de manière négative la surface de la membrane permettant des répulsions électrostatiques fortes avec les protéines de même charge du milieu à traiter (Figure I-8) [24]. Le choix du matériau utilisé est fonction de l'application visée, de la technologie permettant la formation de la membrane, de sa capacité à former une membrane poreuse et de son coût. Par exemple : les polymères à base d'acétate de cellulose possèdent de faibles propriétés d'adhésion des protéines, ce qui est souvent requis en biotechnologie, mais ne possèdent pas une bonne résistance au lavage chimique. Contrairement, le polyethersulfone possède des propriétés de résistance élevées au nettoyage alcalin mais est colmaté de manière importante par des liquides agro-alimentaires chargés en protéines.

Le module de filtration utilisé dans cette thèse est composé de fibres creuses de polyethersulfone modifiée chimiquement par sulfonation. Ce polymère est l'un des plus importants matériaux polymérique utilisés. En effet, sa stabilité face à l'oxydation, aux hautes températures et à l'hydrolyse aussi bien que ses propriétés mécaniques et la capacité de former des films, lui confère une place de choix dans les matériaux de filtration [25].

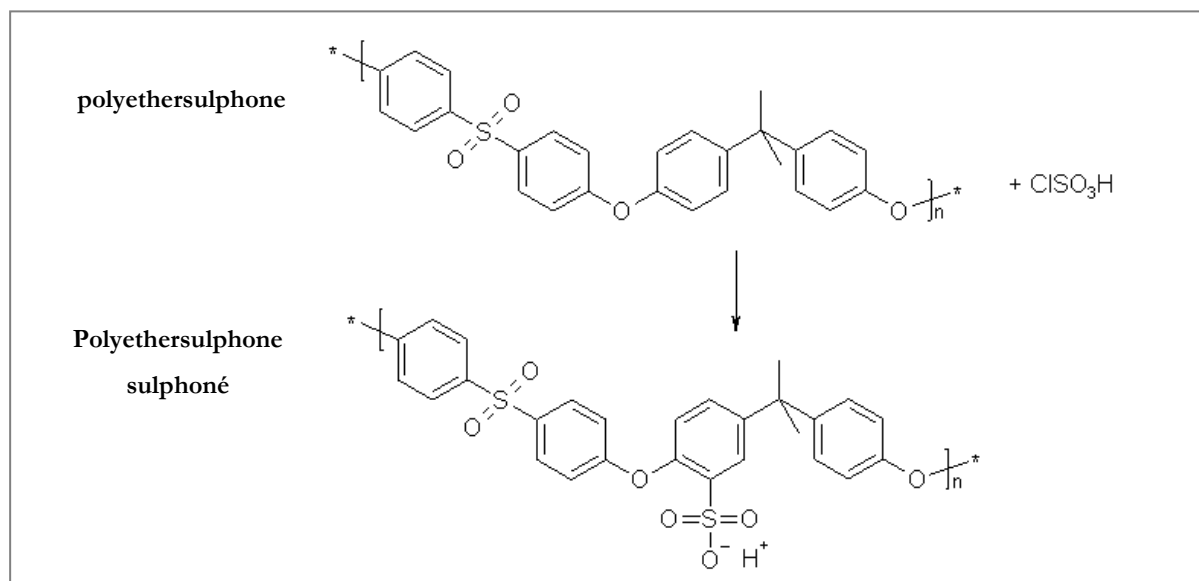


Figure I-8. Etape de la sulfonation du polyethersulfone.

I.3.4 Configuration et design des membranes.

Comme nous l'avons vu au paragraphe I.3.2, deux modes de filtration peuvent être utilisés : le mode frontal et le mode tangentiel. Ces deux configurations peuvent être déclinées en un certain nombre de géométries de modules dont le choix dépend :

- de l'existence de zone morte susceptible d'être le lieu de développement bactérien,
- de la facilité de nettoyage,
- de la sélectivité de la filtration vis-à-vis des composants du produit à filtrer,
- et de sa capacité à travailler dans les conditions opératoires préconisées dans le procédé global (conditions hydrodynamiques, volumes, etc.).

Dans ce cadre là, plusieurs configurations de modules peuvent être distinguées et sont résumées dans le Tableau I-1:

Tableau I-1. Comparaison des différentes configurations des modules de filtration [3].

Configuration du module	Compacité (m ² /m ³)	Dépense énergétique	Colmatage particulaire	Facilité de nettoyage
Fibres creuses	1200	Faible	Faible	Faible
Tubulaire	60	Haut	Haut	Haut
Plane	300	Modérée	Modérée	Modérée
Spiralé	600	Faible	Faible	Faible

I.3.5 Module à fibres creuses.

Vers la fin des années 1960, les modules à fibres creuses ont été développés pour du dessalement chez DuPont et furent également développés chez Amicon et Romicon dans les années 1970 pour de l'ultrafiltration et de la microfiltration [23]. Les modules sont généralement constitués d'un faisceau de fibres creuses possédant une peau externe dense, conférant à la membrane ses propriétés sélectives, et une matrice plus ouverte assurant l'intégrité structurale de l'ensemble. La peau externe peut être placée à l'intérieur de la fibre en mode de filtration interne/externe. Le liquide d'alimentation s'écoule à l'intérieur de la fibre et le perméat est évacué radialement à travers la paroi poreuse des fibres (Figure I-9). Ce type de configuration permet au module de fonctionner à des pressions transmembranaires plus élevées car la plupart des membranes de microfiltration possèdent une plus grande stabilité structurale quand le perméat est évacué radialement depuis le cœur de la fibre [26]. La peau externe sélective peut également être placée à l'extérieur de la fibre pour effectuer une filtration externe/interne. Dans ce type de configuration le fluide à filtrer est à l'extérieur des fibres et le perméat est évacué à travers la paroi poreuse dans la fibre. Le module utilisé dans cette étude est symétrique, car permet une filtration dans le sens interne/externe ainsi que dans le sens externe/interne. En effet la peau est placée à la fois à l'intérieur et à l'extérieur de la fibre.

Le module membranaire doit satisfaire à un certain nombre d'exigences mécaniques (séparation effective du milieu et du perméat etc.), économiques (minimisation des coûts de fabrication, optimisation de la compacité membranaire etc.) ou hydrodynamiques. Ce dernier aspect englobe la minimisation des pertes de charge de l'installation, l'optimisation du transfert de masse des solutés (réduire la concentration de polarisation), la réduction de colmatage particulaire et la minimisation des zones mortes. L'écoulement à travers la lumière de la fibre creuse est ainsi défini t comme typiquement laminaire :

$$Re = \left(\frac{4\rho Q}{\pi Nd\mu} \right) < 1500 \quad \text{Équation I-3}$$

avec ρ masse volumique du liquide, Q débit volumique, N nombre de fibres, d diamètre interne des fibres, μ viscosité du fluide. La perte de charge (ΔP) ainsi que la contrainte tangentielle (γ_w) sont directement proportionnelles au débit volumique :

$$\frac{\Delta P}{L} = \alpha \mu \frac{Q}{Nd^4} \quad \text{Équation I-4}$$

$$\gamma_w = \alpha \left(\frac{Q}{4Nd^3} \right) \quad \text{Équation I-5}$$

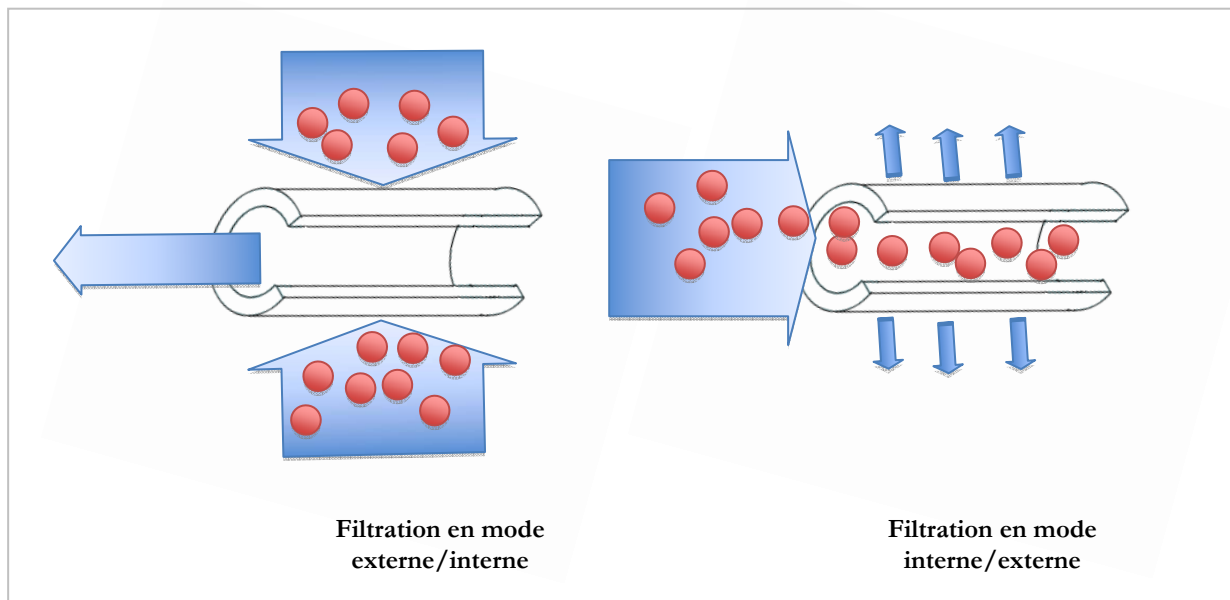


Figure I-9. Schématisation des modes de filtration d'une fibre creuse.

ou N , d , et L sont respectivement le nombre, le diamètre interne et la longueur des fibres. Il est à noter que les équations I-4 et I-5 ci-dessus ne tiennent pas compte de l'accumulation de

soluté/particules dans la couche limite proche de la membrane et sont issues d'une condition de non glissement du fluide sur une paroi de tube. (NB : cela n'est pas rigoureusement valide dans le cas d'une paroi poreuse)

Un des avantages majeurs de la configuration en modules de fibres creuses est la possibilité d'obtenir des transferts de masse élevés (c.à.d. des fortes vitesses de cisaillement γ_w) pour de relativement faibles débits volumiques Q , à cause de la faible valeur de d (Equation I-4). En outre, le petit diamètre des fibres permet une augmentation du nombre de fibres par unité de surface de section du module. Le module possède donc une compacité ou densité de fibres élevées induisant une grande surface de filtration pour un volume de module réduit. Ces modules présentent aussi l'avantage d'être autosupportés (absence de support de membrane pour la filtration), permettant des procédés de nettoyage en place tels que la rétrofiltration qui consiste en une inversion du sens de flux de perméat.

Le tableau est moins idéal lorsque l'on considère les inconvénients liés à ce type de module. En effet, l'un des inconvénients majeurs réside dans la multiplicité des zones mortes dues à un grand nombre de fibres et dans les difficultés d'écoulement dans le module liés à une forte densité de fibres (écoulement entre et au sein des fibres). Ce dernier point sera approfondi en détails dans les chapitres III et IV en mettant clairement en évidence l'impact du paramètre « densité de fibres » sur les performances de filtration.

Résumé:

Les membranes de filtration permettent une séparation sélective des liquides à traiter. Ces membranes présentent des modes de fonctionnement et des configurations variées. Les fibres creuses permettent une séparation à faible coût énergétique, pour une surface de filtration importante et un volume réduit occupé par le module. Les avantages de ce type de configuration ainsi que l'illustration du pilote permettent au lecteur de comprendre le choix effectué par Salgado sur ce type de configuration. La limitation majeure lors de l'utilisation des membranes de filtration est le colmatage, décrit comme une altération de la membrane causée par des interactions physico-chimiques spécifiques entre la membrane et des composés présents dans le liquide à filtrer.

I.4 Transfert de matière à l'interface et limitations : polarisation de concentration et colmatage en microfiltration.

Le problème intrinsèquement lié à la séparation est la rétention de particules ou solutés de taille supérieure au diamètre des pores de la membrane, entraînant l'accumulation de matière et la formation d'un dépôt à la surface de la membrane. Cette limitation au transfert appelée colmatage est fonction de la diffusion des particules/solutés présentes dans la solution, de la convection du fluide et des interactions physico-chimique de surface entre particules et entre particules et surface membranaire.

La diffusion des particules est liée à la nature des particules et des espèces présentes en solution. La convection est quant à elle liée à la pression transmembranaire appliquée. Enfin, les interactions de surface incombent aux propriétés propres des particules/solutés ainsi qu'à la force ionique. Dans un premier temps la polarisation de concentration sera brièvement expliquée, car nécessaire pour la compréhension des phénomènes limitant en filtration et une deuxième partie sera approfondie sur le colmatage particulaire et plus particulièrement sur la formation d'un gâteau de filtration.

I.4.1 Transfert de solvant.

Macroscopiquement, la membrane est caractérisée par sa perméabilité (L_p en m), dépendante principalement de la structure de la peau externe. La loi de Darcy permet de lier la viscosité du fluide (μ en Pa.s) qui s'écoule à travers la membrane, à la densité de flux de perméation volumique (J en l.h⁻¹.m⁻² ou m.s⁻¹), ainsi qu'à la différence de pression appliquée de part et d'autre de la membrane PTM (Pa) et à cette perméabilité :

$$J = \frac{Q_s}{S} = \frac{L_p}{\mu} PTM \quad \text{Équation I-6}$$

Q_s et S sont respectivement le débit de perméation de solvant pur (l.h⁻¹ ou m³.s⁻¹) et la surface membranaire (m²). La résistance hydraulique est ici définie comme l'inverse de la perméabilité et représente la résistance à l'écoulement d'une surface par unité de média filtrant.

$$R_m = \frac{\Delta P}{\mu J} = \frac{1}{L_p} \quad \text{Équation I-7}$$

Cette résistance est analogue à celle de la résistance électrique d'un fil de résistivité ρ , de longueur l , et de section s : $R = \rho \frac{l}{s}$. Le rapport $\frac{\Delta P}{\mu}$ est analogue à une différence de potentiel et J à une intensité électrique par unité de surface.

Il convient de signaler qu'une forme alternative de l'équation peut être écrite en terme de résistance. Cette deuxième forme permet de tenir compte de plusieurs couches poreuses en séries. Dans un tel cas, la résistance totale au flux de solvant est égale à la somme des résistances individuelles, soit,

$$J = \frac{\Delta P}{\mu \sum_i R_i} \quad \text{Équation I-8}$$

I.4.2 Polarisation de concentration.

Un des facteurs critique déterminant les performances générales de n'importe quel système de microfiltration réside dans le taux de transfert de soluté ou de particule dans la couche de liquide adjacente à la membrane (Figure I-10). L'écoulement du fluide à travers la membrane due à l'application d'une pression, transporte par convection les solutés vers la surface membranaire.

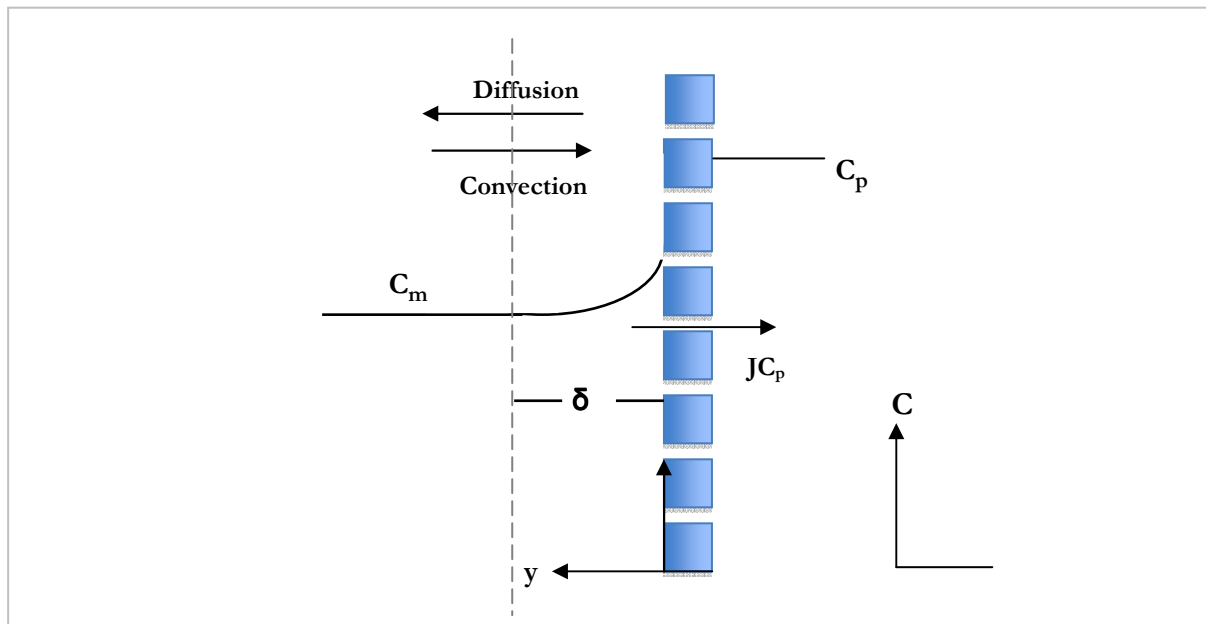


Figure I-10. Représentation schématique du transport diffusif et convectif des solutés dans la couche de polarisation de concentration d'épaisseur δ [3].

Les molécules n'arrivant pas à traverser librement la membrane s'accumulent à l'interface entre la solution et la surface membranaire et ne peuvent revenir au sein du retentât que par diffusion à contre courant du flux du liquide d'alimentation. La diffusion est un phénomène lent et un gradient est établi avec la vitesse de convection. La différence de concentration à la membrane (C_m) et le compartiment perméat (C_p) entraîne donc une différence de potentiel chimique et l'apparition d'une pression dite osmotique. [23]. Cette pression se développe du compartiment le moins concentré vers le compartiment le plus concentré. Cette pression osmotique s'oppose en partie à la pression appliquée diminuant ainsi la force agissante [17, 27].

Si l'on trace l'évolution du flux de perméation en fonction de la pression transmembranaire (Figure I-11), on peut alors définir 3 zones distinctes :

- une première zone où le phénomène de polarisation de concentration est négligeable, le flux de perméation est proportionnel à la pression transmembranaire appliquée,
- une zone où le flux n'est plus proportionnel à cette pression, correspondant au phénomène de polarisation de concentration,
- et enfin une dernière zone où la densité de flux de perméation est contrôlée par le dépôt de particules.

La polarisation de concentration est un phénomène réversible et peut être contrôlée en ajustant la configuration et les conditions opératoires propres aux procédés utilisés.

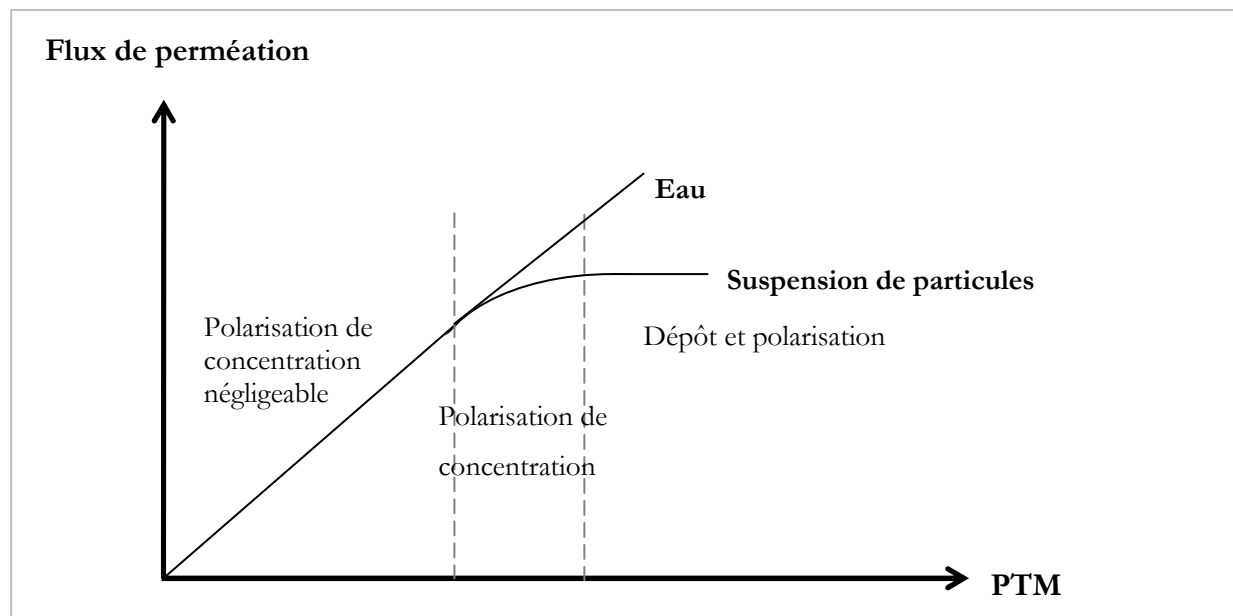


Figure I-11. . Evolution du flux de perméat à l'état stationnaire en fonction de la pression transmembranaire dans le cas d'un flux à l'eau et la filtration d'une suspension [2].

I.4.3 Colmatage.

I.4.3.1 Définitions.

Le colmatage peut être défini comme la conséquence des phénomènes résultant du passage de la matière de la phase liquide à la phase solide, cette dernière formant un dépôt sur ou dans la membrane. On distingue le colmatage externe en surface de la membrane, du colmatage interne, situé dans la structure poreuse de la membrane [3]. Ce phénomène se manifeste typiquement par une diminution du flux de perméat et une altération de la sélectivité membranaire. Ce changement de propriétés de membrane conduit, pour maintenir un flux de perméat correspondant aux attentes de l'utilisateur, à des procédures de nettoyage de membrane ou à son remplacement. Il est important de noter, avant de poursuivre, que le terme irréversible concernant le colmatage est relatif. Les changements des propriétés membranaires causées par le colmatage peuvent être réversibles par l'utilisation de rétro lavage, de forte vitesse de cisaillement, ou de nettoyage chimique. Cependant, les forces mécaniques ou chimiques requises pour éliminer le colmatage ne sont pas générées en conditions standard et doivent être effectués par des cycles séparés de « nettoyage » [28]. Le double bioréacteur à membrane étudié dans cette thèse, de par son fonctionnement, alterne les cycles de filtration et rétrofiltration (ou rétrolavage), limitant ainsi en partie le colmatage (Figure I-14).

I.4.3.2 Mécanismes de colmatage par dépôt de macro solutés ou de particules.

Considérant la multiplicité des composants et solutés intervenant dans une culture pure ou culture mixte de micro organismes, plusieurs mécanismes de colmatage sont théoriquement présents simultanément. Cependant il est rare qu'ils aient une importance égale, l'essentiel étant donc de caractériser et de déterminer le mécanisme prépondérant.

L'adsorption est un phénomène physico-chimique se produisant sous l'effet d'interactions entre certains constituants du fluide et une surface solide (membrane). Ces interactions sont fortes et conduisent à des couches irréversibles stables [29, 30]. L'adsorption sur une membrane dépend de la nature physico chimique du matériau, du type de molécules, du pH et la présence de cations divalents tels que par exemple le Ca^{2+} .

Un mécanisme connexe intervient également dans le colmatage et résulte **de l'apport de matière par convection**. Outre le phénomène de dépôt en surface de la membrane lorsque le fluide

contient des particules, des insolubilisations ou précipitations locales, des agrégations colloïdales, des dénaturations moléculaires et de la précipitation minérale peuvent également intervenir.

Trois mécanismes sont généralement distingués [3, 23] pour expliquer la chute du flux de perméation associée au dépôt de particules: **le blocage de pore, la constriction de pore et le colmatage par gâteau**. Ces différents mécanismes de colmatage particulaire peuvent être aisément représentés en utilisant la formulation de Darcy appliquée au flux de filtration, modifiée au préalable pour prendre en compte l'effet de la pression osmotique.

$$J = \frac{\Delta P - \sigma_0 \Delta \Pi}{\mu(R_m + R_c)} \quad \text{Équation I-9}$$

où σ_0 est le coefficient de réflexion osmotique, $\Delta \Pi$ est la différence de pression osmotique trans membranaire, et R_m et R_c sont respectivement les résistances hydrauliques de la membrane et de la couche colmatante. La résistance membranaire peut être évaluée à partir de l'équation issue du modèle de pore uniforme (Equation de Hagen Poiseuille) :

$$J = \frac{N_p \pi r_p^4 \Delta P}{8 \mu \delta_m} \quad \text{Équation I-10}$$

Alors en combinant l'Equation I-9 et l'Equation I-10:

$$R_m = \frac{8 \delta_m}{N_p \pi r_p^4} \quad \text{Équation I-11}$$

où N_p est la densité de pore membranaire, r_p le diamètre des pores, et δ_m l'épaisseur de la membrane.

Les trois mécanismes associés au colmatage par dépôt de particules (Figure I-12) correspondent donc :

- à une réduction du nombre de pores accessibles N_p par blocage partiel ou total par des particules sur lesquelles des composés peuvent être adsorbés : *blocage de pores*,
- à une diminution du diamètre effectif des pores membranaires r_p : *constriction de pores*,
- et à une augmentation de la résistance induite par le gâteau de filtration accumulé en surface membranaire R_c .

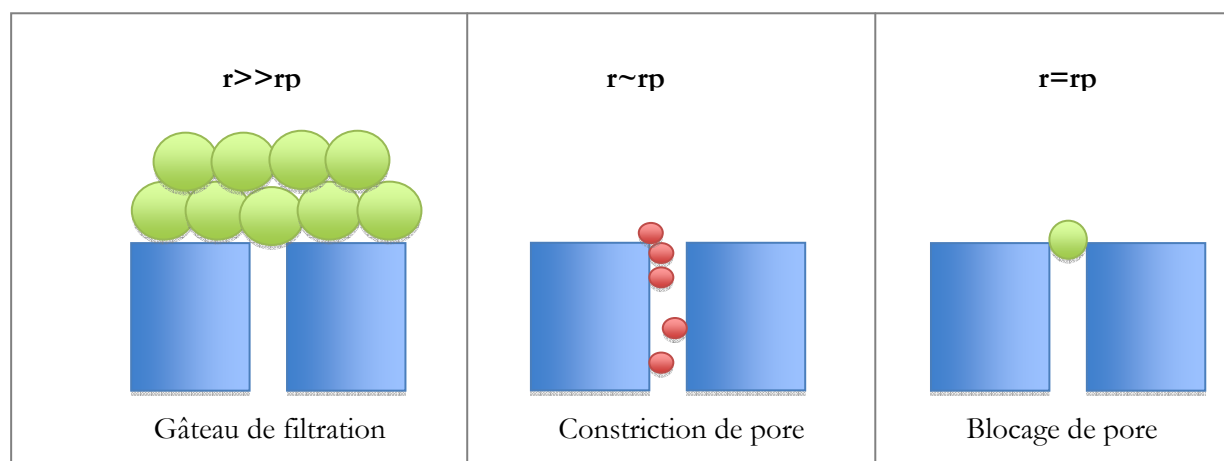


Figure I-12. Mécanismes de colmatage par dépôt de macro-solutés ou de particules.

I.4.3.3 Colmatage par des protéines.

Le colmatage d'une membrane lors de la filtration d'une solution contenant des protéines reste un sujet controversé, autant sur le point mécanistique que sur son importance sur le phénomène de concentration de polarisation [31, 32]. Les milieux de culture retrouvés en fermentation comportent une certaine quantité de protéines dépendante de la nature du micro-organisme considéré et de son état physiologique.

Les facteurs affectant ce dépôt, qu'il soit un dépôt de surface ou interne, sont par exemple la pression, la concentration en protéines, le pH ainsi que leur capacité à s'adsorber sur la surface membranaire [18]. L'augmentation de la pression transmembranaire appliquée n'engendre pas directement un accroissement proportionnel du flux de perméation, car ces dépôts sont compressibles [20, 31]. De nombreuses études ont décrit le phénomène de colmatage par des protéines et spécialement par l'albumine issue du sérum bovin (BSA). La forte augmentation de la résistance hydraulique d'une membrane de microfiltration (0,16 μm) en polysulfone après filtration de BSA est directement attribuable à la formation d'un dépôt de protéines sur la surface externe de la membrane [33]. Ce dépôt est constitué de larges agrégats de BSA entourés d'une matrice de protéine amorphes.

Dans le cadre de cette thèse, le colmatage par des protéines peut rendre le lecteur sceptique quant au libre transfert de protéines d'un réacteur à l'autre via la membrane d'une part, et de composés participant aux interactions d'autre part. Dans cette même étude citée plus haut, Mochisuky *et al.* [20] ont étudié le caractère tamisant d'un dépôt de BSA sur une membrane de microfiltration vis-

à-vis de dextrans polydisperses. Ils ont ainsi démontré qu'une membrane colmatée par ce type de dépôt acquiert des caractéristiques de rétention comparables à celle d'une membrane d'UF. Ceci est donc à prendre en compte dans l'étude du transfert et du temps de mélange entre les deux réacteurs du pilote.

I.4.3.4 Maîtrise et contrôle du colmatage.

Limiter le colmatage est actuellement un des axes majeurs de la recherche appliquée en techniques membranaires. Comme nous l'avons dit précédemment, différents types de colmatage existent et dans chacun de ces cas, des techniques de lutte ou de contrôle peuvent être proposées. Dans le cas de l'adsorption, les solutions sont liées à la préparation des solutions à filtrer ou à l'ajustement des propriétés structurales et physico-chimiques de la membrane [34]. Une des voies de limitation du colmatage repose sur les techniques générant des instationarités en proche paroi de la membrane comme des promoteurs de turbulence à la surface de la membrane. Ces techniques mécaniques où l'on peut citer également la vibration mécanique [35], les ondes infra sonores [36], etc...sont très efficaces pour augmenter le flux de perméat, mais ne peuvent pas, ou difficilement, être mises en œuvre dans le cadre du double bioréacteur à membranes immergées.

Cependant, ce procédé possède un avantage technologique intrinsèque qui est la succession de cycles de filtration et de rétrofiltration que l'on qualifie de rétrolavage lorsque l'on parle de techniques de lutte du colmatage (Figure I-13).

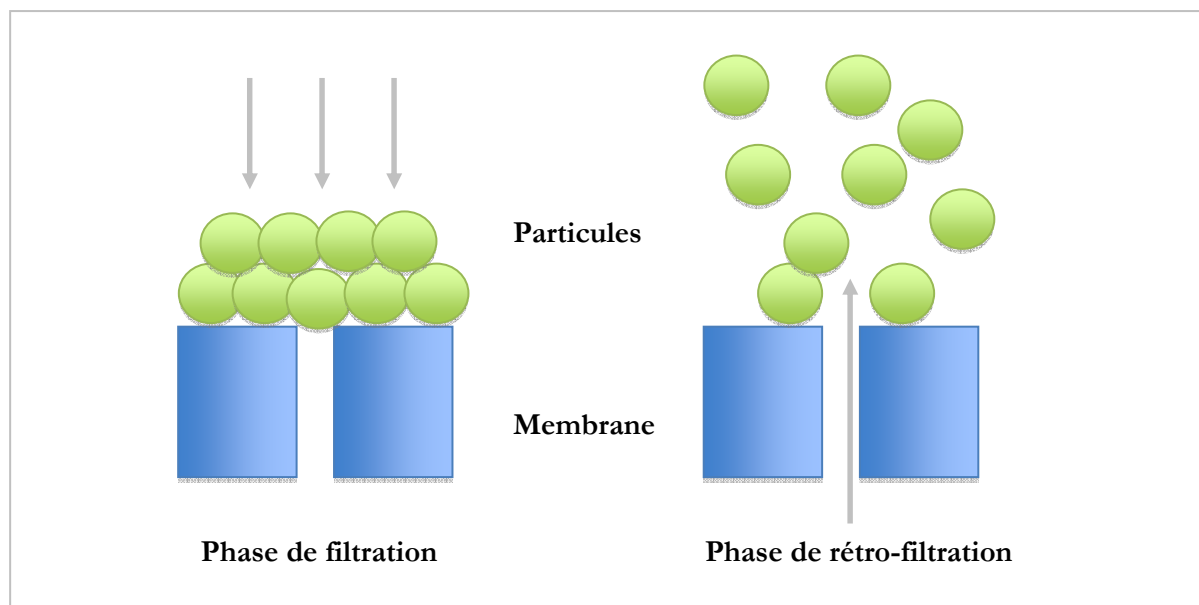


Figure I-13. Représentation schématique des procédés de filtration et rétro filtration ou rétrolavage.

Le rétrolavage consiste en une inversion périodique du flux de perméat. Le flux est arrêté et le compartiment perméat est mis sous pression : le perméat produit repasse donc en partie au travers de la membrane mais en sens inverse de la filtration permettant de décoller le gâteau formé lors de la phase de filtration. Celui-ci est entraîné loin de la membrane par l'écoulement créé.

L'efficacité de ce procédé de rétrolavage est directement liée aux paramètres opératoires tels que la pression transmembranaire de rétrolavage, la durée de la phase de rétrolavage (fixant le volume de perméat renvoyé) et la vitesse superficielle de liquide dans les fibres.

Néanmoins, cette efficacité de rétrolavage est également liée aux caractéristiques du dépôt et des particules le composant. Les fluides biologiques comme les eaux usées, ou dans le contexte de cette thèse, les milieux de fermentation, étant des fluides complexes, certains auteurs ont travaillé avec des fluides plus simples comme modèles pour apporter une contribution à la compréhension des mécanismes mis en jeu. Ainsi, Hong *et al.* [37] ont montré que l'efficacité du rétrolavage était diminuée par une augmentation de la force ionique. En effet la structure du dépôt pour une force ionique fixée, présente une porosité donnée résultant de l'empilement des particules le composant et des forces électrostatiques de répulsion et d'attraction induites par la présence d'ions. L'augmentation de la force ionique entraîne une modification de ces forces d'interactions par l'intervention d'ions sur les forces de répulsion et d'attraction. Le dépôt observé par ces auteurs s'est densifié et l'efficacité de rétrolavage en a été diminuée.

La culture pure de micro organismes peut induire l'apparition de petites particules telles que les débris cellulaire liés à la mort cellulaire. En cultures mixtes, la présence de deux ou plusieurs micro-organismes de tailles différentes est généralement classique. La présence de ces particules de tailles différentes induit des modifications de structure de dépôt comme l'on montré Bourgeous *et al.* [38] dans le cas d'eaux usées. L'augmentation du nombre de particules de taille inférieure à 5 μm a conduit à la formation d'un dépôt plus résistant et moins bien éliminé par rétrolavage.

Résumé:

La complexité des milieux biologiques, et, dans le cadre de cette thèse, des cultures pures utilisées pour l'étude des interactions microbiennes, peut donner lieu à une grande diversité de mécanismes limitant le transfert à travers une membrane micro-poreuse.

La formation d'un gâteau de colmatage (cellules, polymères synthétisés, produits du catabolisme, fragments de cellules mortes) réduit le flux de perméat et la vitesse de transfert des molécules d'intérêt.

La solution technique proposée passe par un choix de module de filtration adéquat permettant :

- une surface de filtration la plus grande possible dans un volume de module le plus restreint,
- par le procédé de rétrofiltration, avantage technologique implicite au pilote (Figure I-14).

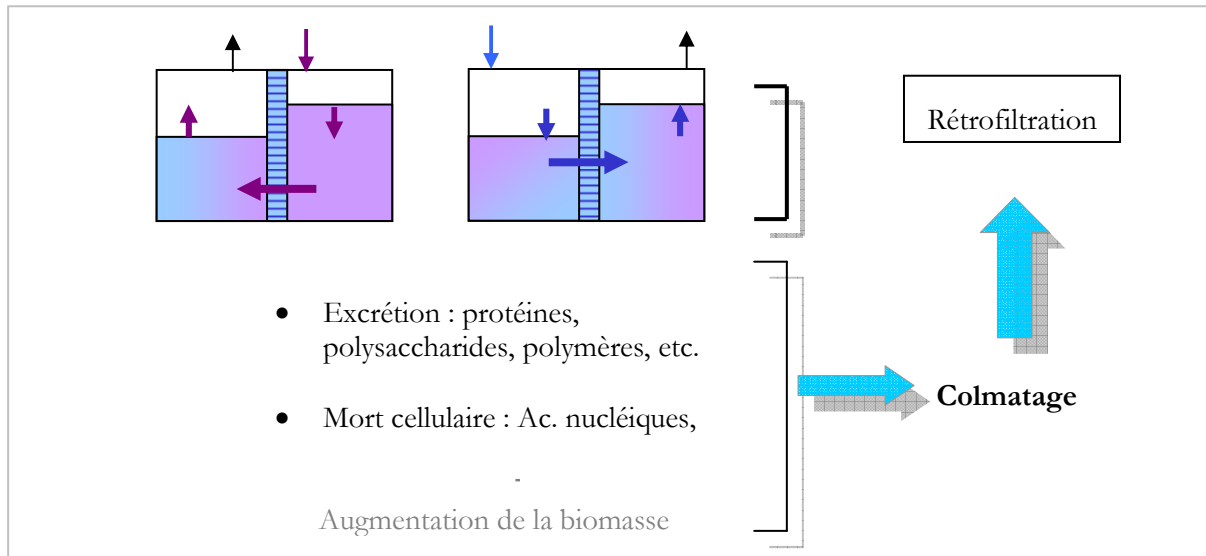


Figure I-14. Schématisation du cycle de filtration/rétrofiltration, avantage technologique du pilote DBAMI.

L'approche *a priori* décrite dans cette dernière partie pour améliorer les phénomènes de transfert à travers la paroi poreuse du module de filtration, peut être validée ou non par des techniques de simulation numérique permettant de faire varier les paramètres de constructions du module et d'en étudier les performances de filtration.

I.5 Approche numérique de la filtration membranaire et modélisation de la formation d'un dépôt.

I.5.1 Mécanique des fluides appliquée à la filtration membranaire.

En dépit des nombreuses avancées dans la compréhension des phénomènes de transfert de masse grâce aux techniques expérimentales, les phénomènes locaux se déroulant dans les unités membranaires et leurs cinétiques, au sens large du terme, ne sont pas complètement compris. De plus, les techniques expérimentales classiques de mesure en proche paroi poreuse sont susceptibles d'altérer l'écoulement, ajoutant de la difficulté lorsque l'on veut découpler les phénomènes intervenant dans le transfert.

Les techniques numériques possèdent un grand potentiel pour aider à la compréhension des phénomènes agissant sur le transfert de masse dans les systèmes de séparation membranaire et ainsi dégager des tendances sur l'influence respective des paramètres opératoires. Elles permettent en outre de fournir des informations sur les conditions d'écoulement de fluide à n'importe quel point de la géométrie. En termes de temps, et de coût lié à la répétition d'expérimentations, la simulation numérique ou expérience numérique permet un gain significatif.

Les techniques numériques assistées par ordinateur (CFD : Computational Fluid Dynamics) utilisées pour la simulation des écoulements de fluide, sont devenues des outils largement utilisés en science des membranes [39]. Un nombre de plus en plus important d'équipes de recherche utilise cette technique dans le but d'analyser à l'échelle locale les phénomènes se déroulant à l'intérieur des modules de filtration. De par sa simplicité et son coût moindre en terme de temps de calcul, de nombreuses études se sont intéressées à la modélisation et la simulation des écoulements en fibres creuses en deux dimensions, comme le montre le nombre de travaux dans ce domaine (Tableau I-2). La CFD est donc maintenant acceptée comme un outil fiable et le lecteur est renvoyé au chapitre I permettant de voir l'intérêt de l'utilisation de cet outil dans la compréhension et l'optimisation des écoulements au sein d'un module de fibres creuses.

Tableau I-2. Résumé de quelques contributions importante de l'utilisation de la CFD 2D à l'étude des membranes.

Auteurs	Géométrie analysée	Signification
Pellerin et al (1995)[40]	Canal 2D	Une des toutes premières études par CFD appliquée aux membranes avec incorporation de la perméation et du transfert de masse
Geraldes et al (2001, 2002)[41, 42]	Canal 2D	Propriétés dépendantes de la concentration des espèces en solution ; calcul du flux de perméat.
Wiley and Fletcher (2003, 2004) [43, 44]	Canal 2D	Modélisation des canaux côtés perméat/cotés rétentat
Alexiadis et al [45] (2005)	Canal 2D	Effet des changements de PTM sur la polarisation de concentration.

I.5.2 CFD en condition laminaire et modèle simple.

I.5.2.1 Modèles à 2 dimensions.

Le calcul de l'écoulement dans un canal présentant des parois poreuses n'est pas récent. Berman en 1953 et Yuan en 1955 [46, 47] furent les premiers à résoudre l'équation de Navier Stokes pour un écoulement laminaire dans un canal à paroi poreuse avec aspiration uniforme de faible intensité. Depuis, un grand nombre d'auteurs se sont intéressés à la simulation de la filtration en condition laminaire [48, 49]. La chronologie de la démarche est caractéristique de la simulation d'un procédé et le niveau de détail dépend généralement de l'application. En effet, les conditions laminaires ont été simulées en premier car elles sont les plus simples à mettre en œuvre numériquement [46]. Plus tard, nous pouvons citer les travaux de Friedman *et al.* considérant l'effet de la viscosité dans leur simulation [50] puis les travaux de Mizushima *et al.* [51] ainsi que Galowin *et al.* [52], simulant un écoulement laminaire dans une conduite poreuse en conditions variables de succion et/ou de flux radial massique.

Marriot *et al.* [53] ont proposé une approche plus générale permettant de modéliser l'écoulement au sein d'un module de fibres creuses ainsi que dans un module spiralé. En effet, ces travaux sont à distinguer de la plupart des modèles existant qui sont généralement limités à une

application donnée en conditions opératoires bien définies. Néanmoins, depuis ces travaux, des solveurs puissants ont été développés pour améliorer la résolution de problèmes en utilisant un nombre d'équations plus important et pouvant combiner à la fois l'équation de Navier Stokes et l'équation de Darcy (Equation I-9).

Nassehi *et al.* [6] ont utilisé l'équation de Darcy pour traduire l'écoulement dans les parois poreuses. L'écoulement tangentiel à la surface du tube a été formalisé par l'équation de Navier Stokes. Cette méthode a permis de relier l'écoulement à travers la paroi poreuse à l'écoulement dans la conduite ainsi que la visualisation d'un écoulement complexe dans un tube poreux (Figure I-15).

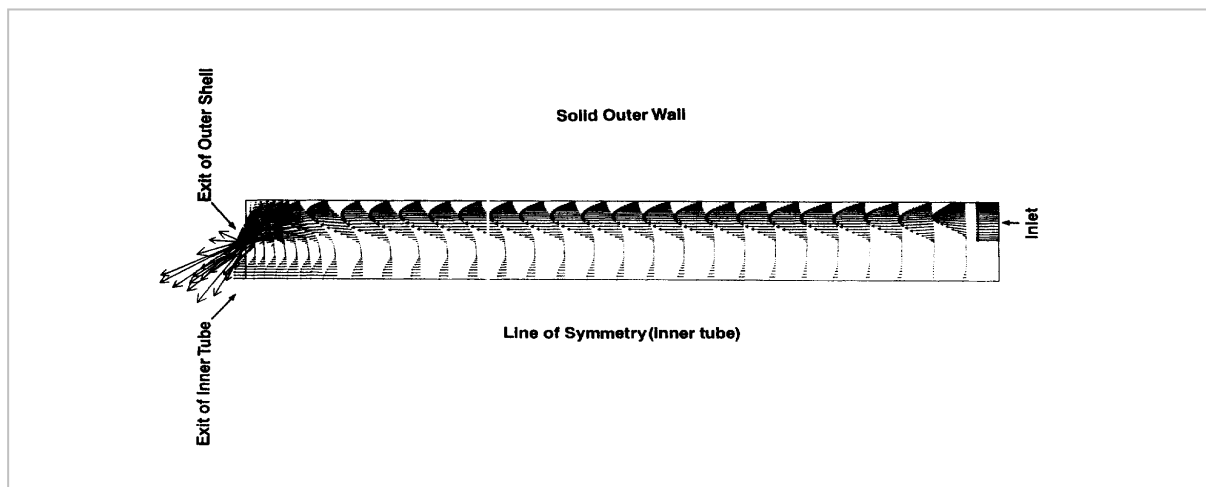


Figure I-15. Champs de vitesse dans un système de canal à paroi poreuse [6].

Une autre étude intéressante a été réalisée par Damak *et al.* [7]. Ce travail porte sur la simulation d'un écoulement laminaire d'un fluide incompressible et isotherme dans un tube cylindrique à parois poreuses (Figure I-16). L'écoulement est considéré comme axisymétrique. Comme précédemment, ces auteurs ont utilisé l'équation de Navier Stokes pour traduire l'écoulement dans le canal et l'équation de Darcy pour modéliser le transfert dans les parois poreuses. L'écoulement est considéré comme complètement développé grâce à une portion du tube, en entrée, de longueur adéquate, définie comme imperméable.

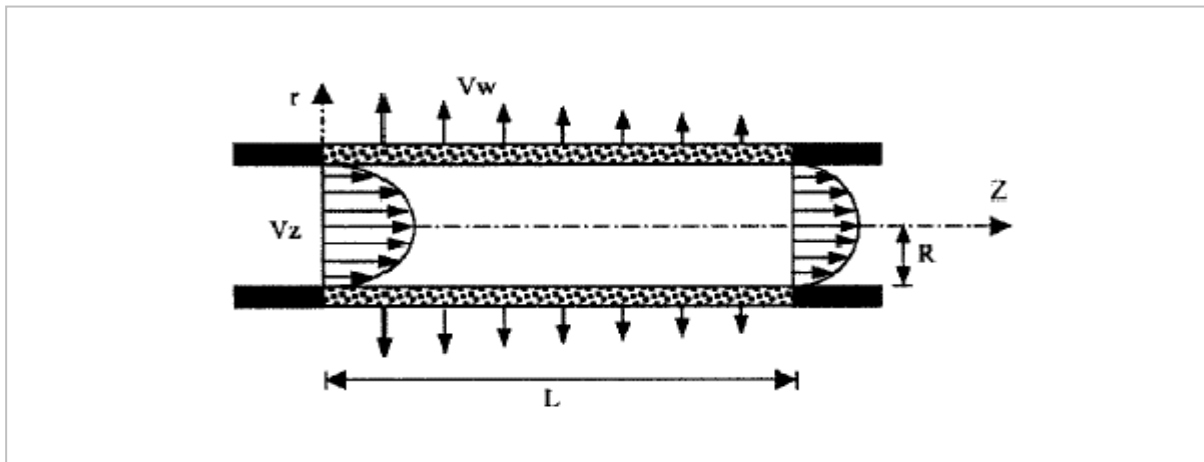


Figure I-16. Représentation de l'écoulement laminaire dans une membrane tubulaire [7].

Cette étude a permis de caractériser l'écoulement laminaire d'un fluide newtonien dans un tube à paroi poreuse perméable et de mettre en évidence l'influence des nombres de Reynolds axial et de Reynolds de filtration Re_w sur les profils des vitesses axial et radial et sur les pertes de charge dans le tube.

NB : Re_w , le nombre de Reynolds de filtration est basé sur la vitesse de filtration et le rayon du canal : $Re_w = \rho v_f R / \mu$ où ρ est la densité du fluide, v_f ou v_w la vitesse de filtration, R le rayon de la fibre et μ la viscosité dynamique du fluide.

Ces travaux permettent d'appréhender l'écoulement complexe d'un fluide monophasique à proximité d'une paroi poreuse de manière simple et sont les bases de la simulation de la filtration en procédés membranaires. Beaucoup de cas très spécifiques peuvent être étudiés grâce à ces modèles d'écoulement laminaire, cependant des progrès sont à effectuer pour les rendre encore plus précis. Néanmoins, dans ces approches, l'impact de la complexité de la géométrie des modules de filtration (multitubulaire, faisceau de fibres) sur l'écoulement du fluide, que ce soit à travers le milieu poreux, ou dans le module n'est pas pris en compte.

1.5.2.2 Modèles à 3 dimensions à l'échelle des fibres.

L'aspect tridimensionnel de l'écoulement dans un système filtrant a été, à notre connaissance, très peu étudié de par la complexité de la modélisation et le coût de calcul. Néanmoins, bien que l'application ne soit pas destinée aux modules de fibres creuses mais plutôt aux filtres hydrauliques plissés pour des applications aéronautiques, les travaux de Benmachou peuvent être cités [54]. La simulation en 3 dimensions qui a été proposée avait pour objectif de mieux appréhender les différents

facteurs pouvant conduire à des hétérogénéités lors de la filtration et l'ajout d'une dimension a permis de prendre en compte le filtre complet.

L'étude en 3 dimensions, par mécanique des fluides numérique, des performances de filtration dans le cas de fibres creuses se retrouve essentiellement dans l'ingénierie biomédicale. Elout *et al.* [55] ont développé un modèle 3D permettant d'évaluer les performances de filtration d'un dialyseur de sang à fibres creuses sur toute la longueur des fibres. L'écoulement dans le dialyseur a été obtenu grâce à la résolution des équations de Navier Stokes et le transport radial dans le milieu poreux par Darcy. Le sang a été modélisé comme un fluide non Newtonien. Cette approche a permis de décrire et de visualiser l'écoulement dans le filtre et les dimensions de fibres utilisées ont pu ainsi être optimisées.

I.5.3 Utilisation de la CFD pour prédire les écoulements au sein d'une géométrie de module de filtration.

Dans cette thèse, le module utilisé présente une géométrie complexe, constitué d'un réseau compact de fibres creuses permettant d'obtenir un ratio surface/volume important. Ainsi les performances de filtration d'un module membranaire peuvent être définies comme le produit du flux de perméat par la surface totale de filtration [39].

Tarabara *et al.* [56] ont montré que la géométrie des modules avait une place importante dans l'optimisation de la filtration. En utilisant un logiciel commercial de mécanique des fluides numérique basé sur la méthode des volumes finis (FLUENT), ces auteurs ont obtenu une simulation de l'écoulement lors d'une filtration tangentielle dans un module commercial SEPA CF. Les champs de vitesses ont été caractérisés en termes de vitesse, de pression et de force de cisaillement. Ils ont ainsi montré que l'écoulement était unidirectionnel sur la majeure partie des canaux composant ces modules de filtration, à l'exception des coins. Des zones de stagnation du fluide ont été mises en évidence à l'entrée et à la sortie du canal. Une relation entre la plus grande vitesse de cisaillement créée dans cette géométrie et la vitesse moyenne de liquide en entrée a été déterminée. Cette étude a ainsi montré qu'en utilisant la CFD, il était possible d'améliorer grandement la géométrie pour aboutir à une optimisation des performances de filtration

Une des études les plus marquantes de l'impact de la géométrie sur les performances de filtration est celle réalisée par Dolecek *et al.* en 1998 [62]. Leur but était de développer des configurations de modules de filtration tangentielle proposant le plus grand ratio surface / volume. La compacité de ces membranes inorganiques de filtration multicanaux pouvait atteindre $400 \text{ m}^2.\text{m}^{-3}$. L'objectif était d'élargir les résultats de simulation à l'étude du flux de perméation dans le support

poreux des membranes polymériques comportant 19 canaux (Figure I-17). Parmi d'autres paramètres concernant l'épaisseur de la peau externe sur la perméabilité, les effets de la géométrie sur la distribution du flux de perméation ont été étudiés.

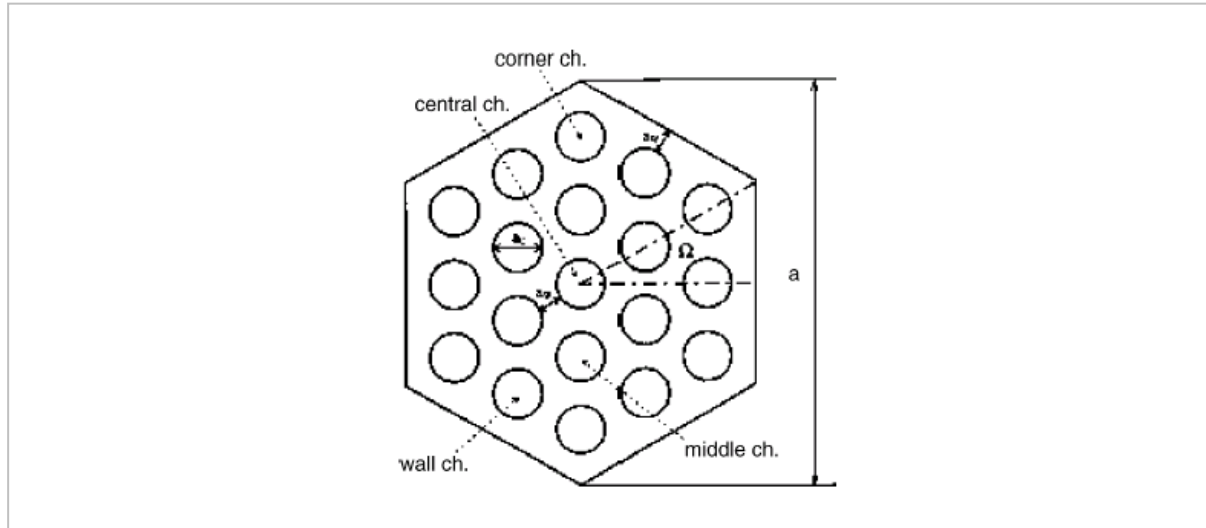


Figure I-17. Géométrie de la membrane multicanaux [62].

Les auteurs ont montré que la contribution des canaux et de leur nombre dépendait significativement du ratio entre perméabilité de la peau externe et perméabilité du support poreux, ainsi que de la géométrie générale du module. En d'autres termes, l'optimisation des performances de filtration de ce type de module multicanaux n'est pas proportionnelle à une augmentation de la compacité. En effet, si la perméabilité du support poreux est supérieure à celle de la peau externe des canaux, le flux de perméat est contrôlé par cette dernière et la contribution de tous les canaux est équitablement distribuée. Ceci est également le cas pour de faibles valeurs de perméabilité du support poreux. Ainsi, les performances de filtration sont proportionnelles à la surface membranaire. Par contre, pour de forte valeur de perméabilité du support poreux, la région centrale du module présente une pression transmembranaire plus faible qu'en périphérie. Ceci met en évidence une contribution beaucoup plus faible du canal central et des canaux du milieu (Figure I-18), comparativement aux canaux présents en périphérie. Dans le cas de cette étude, il n'est pas nécessaire d'augmenter le nombre de canaux dans ce type de membrane si ceux présents au centre ne filtrent pas. D'un autre côté, si la perméabilité de la peau externe est élevée ou si les canaux n'en sont pas recouverts, les canaux proches de la surface membranaire contribuent significativement au flux total de perméation alors que la contribution des canaux centraux est négligeable. Ce travail montre donc l'intérêt de la

CFD pour étudier l'influence de la géométrie sur les performances et optimiser la production de nouveaux modules et l'agencement des différents canaux les constituants.

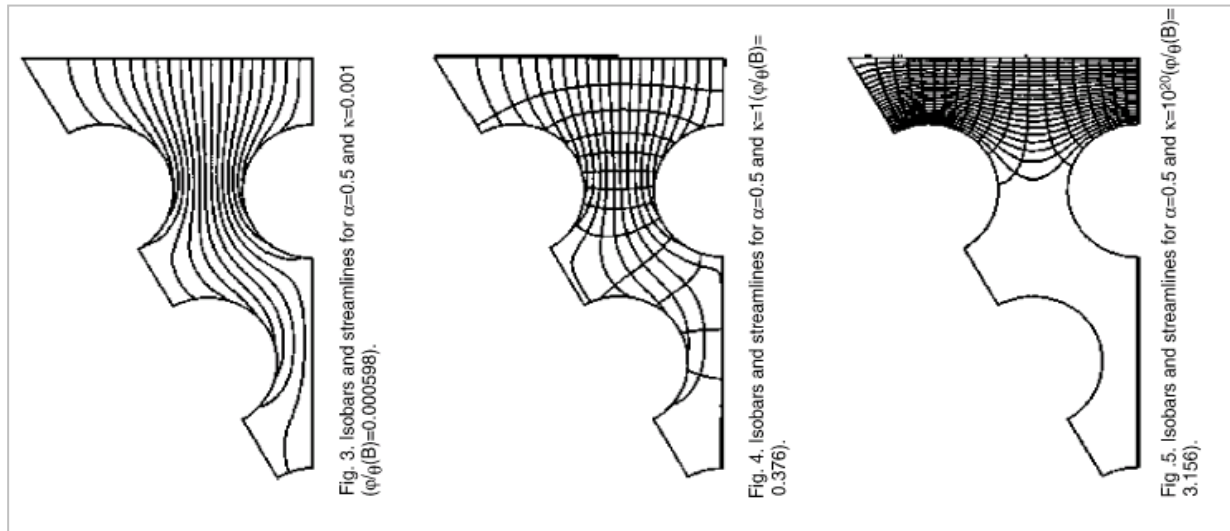


Figure I-18. Isobares et champs de vitesse dans le milieu poreux [62].

I.5.4 Simulation de la formation d'un dépôt.

Dans le contexte des procédés de séparation membranaire, les approches par simulation numérique utilisent des modèles macroscopiques ou microscopiques. La plupart des modèles macroscopiques incorporent des modèles de résistance comme la résistance par blocage de pore ou la résistance par gâteau de filtration (Cf I.4.3.2) alors que peu de modèles microscopiques les utilisent. Les modèles macroscopiques se basent sur une approche globale et s'appuient sur un bilan matière dans lequel le flux de perméat est relié à la pression transmembranaire, à la résistance membranaire totale, à la viscosité ainsi qu'à d'autres paramètres hydrodynamiques. On peut mettre en « opposition » les modèles microscopiques qui utilisent les équations de conservation résolues grâce à des outils spécifiquement développés par les auteurs. Le lecteur pourra se référer aux travaux de Damak *et al.* précédemment cités [7, 57], ainsi qu'aux travaux de Oxarango *et al.* [58]. Les équations de conservation de ces modèles microscopiques peuvent également être résolues grâce aux logiciels commerciaux de mécanique des fluides numériques [59, 60].

Plusieurs échelles de simulation de formation d'un dépôt sont possibles et présentes dans la littérature. Noël *et al.* [61] ont étudié la formation d'un dépôt à l'échelle du pore dans le cas où la taille

des particules est de l'ordre de la taille du pore (Figure I-19). En modélisant l'écoulement dans le domaine fluide par l'équation de Navier Stokes, l'écoulement dans le domaine poreux par l'équation de Darcy-Brinkman et les particules par un champ de porosité et de perméabilité, les auteurs ont étudié l'influence de la structure du dépôt sur l'écoulement. L'outil développé reste très intéressant malgré un temps de calcul long (40h pour la formation d'un dépôt de 100 particules), car il permet de prendre en compte la modification de l'hydrodynamique liée à la formation d'un dépôt et son impact sur le dépôt des particules suivantes.

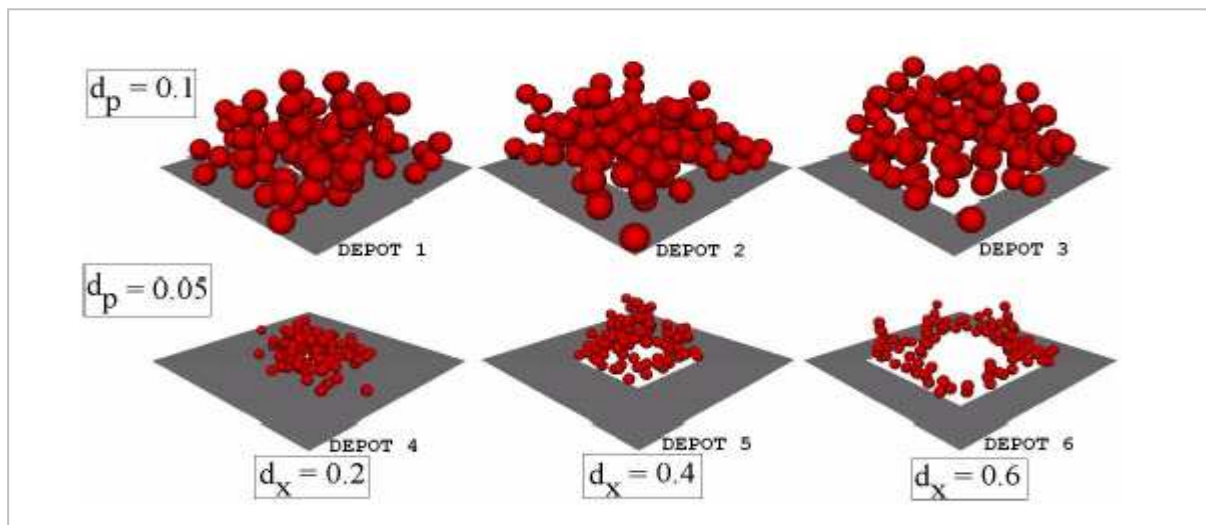


Figure I-19. Morphologie des dépôts formés (100 particules) dans les 6 cas simulés. d_p : diamètre des particules, d_x taille des pores de la paroi [61].

A l'échelle de la fibre, l'approche numérique de Mendret [4] propose d'intégrer les lois de variations des propriétés de structure du dépôt établies expérimentalement, dans un modèle d'écoulement permettant de simuler la formation d'un dépôt dans un canal rectangulaire. Ce modèle basé sur la résolution couplée des équations de Navier Stokes et de Darcy-Brinkman par le code de calcul COMSOL prend en compte la formation du dépôt par sa perméabilité et son épaisseur, à chaque pas de temps, à partir d'un bilan matière faisant intervenir sa porosité. Les résultats ont permis de montrer que, dans le cas d'une perméabilité uniforme le long de la membrane, les effets de gravité et de perte de charge le long de la membrane, dans les conditions géométriques étudiées, ont un effet négligeable sur la répartition du dépôt (Figure I-20). Partant de ce constat, Mendret simule une perméabilité non uniforme sur la longueur de la membrane. Les résultats montrent que le profil d'épaisseur du dépôt épouse dans un premier temps le profil de perméabilité membranaire, puis s'uniformise par la suite très rapidement. Les résultats montrent également que la cinétique d'uniformisation est directement proportionnelle à la pression transmembranaire (Figure I-21).

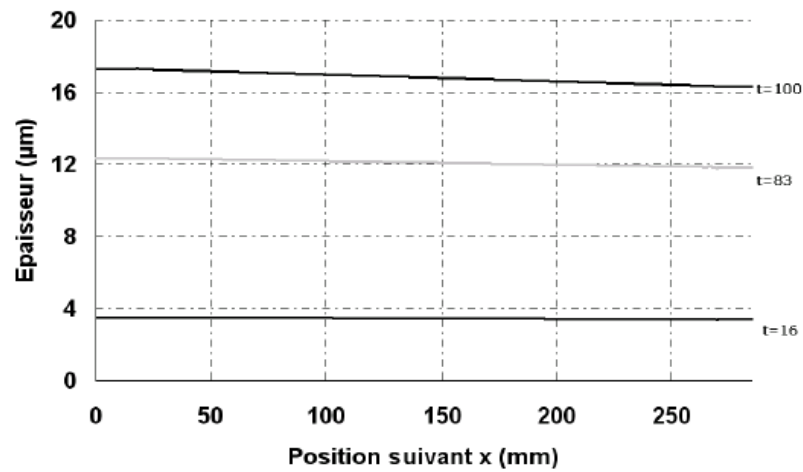


Figure I-20. Epaisseur du dépôt dans la longueur du canal et pour différents temps en minutes (PTM=1 bar, $K_m=10^{-16} \text{m}^2$) [4].

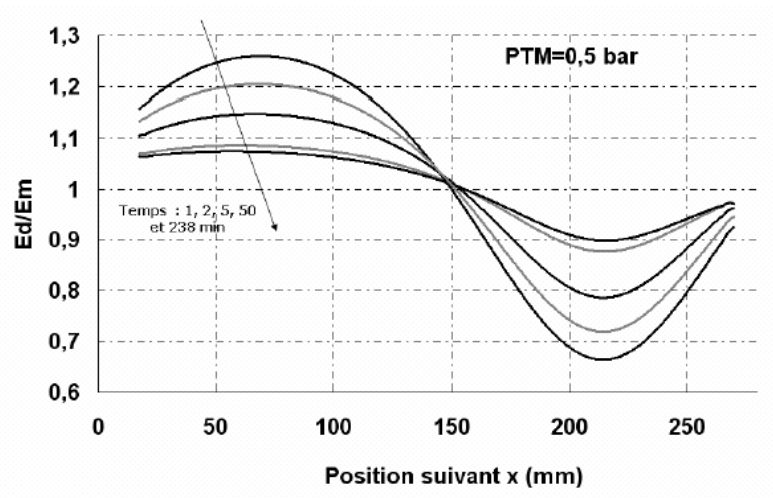


Figure I-21. Rapport E_d/E_m (Epaisseur du dépôt sur épaisseur de la membrane) en fonction de la longueur de la membrane pour différents temps en minutes (PTM=0,5 bar, $c=1 \text{ g.l}^{-1}$) [4].

Résumé:

L'application de la mécanique des fluides numérique aux procédés de séparation membranaire est d'un intérêt tout particulier. A travers les différents niveaux d'observation d'une séparation (pore, membrane, module), les analyses numériques permettent d'atteindre des échelles d'études que les méthodes expérimentales sont encore incapables d'étudier.

L'optimisation des phénomènes de transfert dans le double bioréacteur à membranes, passe par une étude approfondie de l'écoulement et des vitesses de filtration, à la fois au niveau membranaire, c'est-à-dire au niveau d'une fibre creuse, et à la fois au niveau du module (densité de fibres, compacité verticale, compacité horizontale).

Grâce à la complète modularité des modèles numériques présentés dans cette étude le lecteur pourra évaluer l'apport de la mécanique des fluides dans l'optimisation des phénomènes de transfert dans ce double bioréacteur à membranes.

Cette synthèse bibliographique concernant l'approche numérique de la filtration membranaire et la formation d'un dépôt n'est pas exhaustive. Les chapitres de résultats concernant ces approches sont proposés au lecteur sous forme de publication soumis à des journaux internationaux. Elles apporteront donc des compléments bibliographiques sur ces aspects.

Références.

1. Bailey, J.E. et Ollis, D.F., *Biochemical engineering fundamentals*. 1986, Singapore: McGraw-Hill.
2. Espinasse, B., *Approche théorique et expérimentale de la filtration tangentielle de colloïdes: Flux critique et colmatage*. 2003, Université Paul Sabatier: Toulouse.
3. Daufin, G., Rene F., et Aïmar. P., *Les séparations par membrane dans les procédés de l'industrie alimentaire*. Collection sciences & techniques agroalimentaires. 1998, Paris: Lavoisier Tec & Doc. 592.
4. Mendret, J., *Mise au point de méthodes de caractérisation du colmatage de membranes : application à la caractérisation in situ d'un dépôt particulaire en ultrafiltration frontale en lien avec les performances du procédé*. Thèse, INSA, Université de Toulouse, 2007.
5. Lafforgue-Delorme, C., Malinowski J., et Goma. G., *High yeast concentration in continuous fermentation with cell recycle obtained by tangential microfiltration*. Biotech. letter, 1987. **9**: p. 347-352.
6. Nassehi, V., *Modelling of combined Navier-Stokes and Darcy flows in crossflow membrane filtration*. Chemical Engineering Science, 1998. **53**(6): p. 1253.
7. Damak, K., Ayadi A., Zeghmami, B., Schmitz, Ph., *A new Navier-Stokes and Darcy's law combined model for fluid flow in crossflow filtration tubular membranes*. Desalination, 2004. **161**(1): p. 67.
8. Salgado Manjarrez, E., Albasi C., and Riba J.P., *A two-reservoir, hollow-fiber bioreactor for the study of mixed-population dynamics: Design aspects and validation of the approach*. Biotechnology and Bioengineering, 2000. **69**(4): p. 401-408.
9. Dikshitulu, S., *Competition between two microbial populations in a sequencing fed-batch reactor: Theory, experimental verification, and implications for waste treatment applications*. Biotechnology and Bioengineering, 1993. **42**(5): p. 643-656.
10. Goochee, C.G., Hatch R.T., et Cadman T.W., *Evaluation of Escherichia coli and Candida utilis as a model continuous, competitive mixed culture system*. Biotechnology. and Bioengineering., 1987. **29**: p. 453-63.
11. Charles, M., *Fermenter design and scale up*, in *Comprehensive biotechnology*, M.Y. M., Editor. 1985, Pergamon Press: Oxford.
12. Vick Roy, T.B., Blanch H.W., et Wilke C.R., *Lactic acid production by Lactobacillus delbrueckii in hollow fiber fermentor*. Biotechnology. letter, 1982. **4**: p. 483-488.
13. Chang, H. et Furusaki S., *Membrane bioreactors: Present and prospects*, in *Bioreactor Systems and Effects*. 1991. p. 27.
14. Salgado Manjarrez, E., *Conception et mise en oeuvre d'un bioréacteur à membranes pour l'étude de la dynamique de populations mixtes de micro organismes*. 1999, Institut national Polytechnique de Toulouse: Toulouse.
15. Zhang, D.X. et Cheryan M., *Starch to lactic acid in a continuous membrane bioreactor*. Process Biochemistry, 1995. **29**: p. 149-150.
16. Urbain, V., Benoit R., et Manem J., *Membrane bioreactor : a new treatment tool*. American water works Association, 1996. **88**(5): p. 75-86.
17. Belfort, G., Davis R.H., et Zydney A.L., *The behavior of suspensions and macromolecular solutions in crossflow microfiltration*. Journal of Membrane Science, 1994. **96**(1-2): p. 1.
18. Opong, W.S. et Zydney A.L., *Hydraulic permeability of deposited protein layers formed during ultrafiltration*. Journal of colloid and interface science, 1991. **142**(1): p. 41-60.
19. Palecek, P. et Zydney A.L., *Hydraulic permeability of protein deposits formed during microfiltration: effect of solution pH and ionic strength*. Journal of Membrane Science, 1994. **95**(1): p. 71-91.

20. Mochizuki, S. et Zydney, A.L., *Sieving characteristics of albumin deposits formed during microfiltration*. Journal of colloid and interface science, 1993. **158**(1): p. 136-145.
21. Rios, G.M., Belleville, M.-P., et Paolucci-Jeanjean, D., *Membrane engineering in biotechnology : quo vamus ?* Trends in biotechnology, 2007. **25**(6): p. 242-246.
22. Potts, D.E., Ahlert, R.C., et Wang, S.S., *A critical review of fouling of reverse osmosis membranes*. Desalination, 1981. **36**(3): p. 235.
23. Zeaman, L.J. et Zydney, A.L., *Microfiltration and ultrafiltration : principles and applications*. 1996, New York, Basel, Hong Kong: Marcel Dekker.
24. van Reis, R., *High-performance tangential flow filtration using charged membranes*. Journal of Membrane Science, 1999. **159**(1-2): p. 133.
25. Wei, Q., Li, J., Qian, B., Fang, B., Zhao, C.S., *Preparation, characterization and application of functional polyethersulfone membranes blended with poly (acrylic acid) gels*. Journal of Membrane Science, 2009. **337**(1-2): p. 266.
26. Zeman, L.J. et A.L. Zydney, *Microfiltration and Ultrafiltration : Principles and Applications*. 1996: Marcel Dekker, Inc. 618.
27. Bacchin, P., *Formation et résistance au transfert d'un dépôt de colloïdes sur une membrane d'ultrafiltration*. 1994, Université Paul Sabatier: Toulouse.
28. Zydney, A.L., *Stagnant film model for concentration polarization in membrane systems*. Journal of Membrane Science, 1997. **130**(1-2): p. 275.
29. Nakamura, K. et Matsumoto, K., *Adsorption behavior of BSA in microfiltration with porous glass membrane*. Journal of Membrane Science, 1998. **145**(1): p. 119.
30. Israelachvili, J.N., *Intermolecular and surface science*. 1985, New York: Academic Press.
31. Marshall, A.D., Munro, P.A., et Trägårdh, G., *The effect of protein fouling in microfiltration and ultrafiltration on permeate flux, protein retention and selectivity: A literature review*. Desalination, 1993. **91**(1): p. 65-108.
32. Nilsson, J.L., *Protein fouling of uf membranes : causes and consequences*. Journal of Membrane Science, 1990. **52**(2): p. 121-142.
33. Kelly, S.T. et Zydney, A.L., *Mechanisms for BSA fouling during microfiltration*. Journal of Membrane Science, 1995. **107**(1-2): p. 115-127.
34. Shen, L.-Q., Xu, Z.K., Liu, Z.M., Xu, Y.Y., *Ultrafiltration hollow fiber membranes sulfonated polyetherimide/polyetherimide blends: preparation, morphologies and anti fouling properties*. Journal of Membrane Science, 2003. **218**(1-2): p. 279-293.
35. Al Akoum, O., Jaffrin, M.Y., Ding, L., Paullier, P., Vanhoutte, C., *An hydrodynamic investigation of microfiltration and ultrafiltration in a vibrating membrane module* Journal of Membrane Science, 2002. **197**(1-2): p. 37-62.
36. Czekaj, P., Mores, W., Davis, R.H., Güell, C., *Infrasonic pulsing for foulant removal in crossflow microfiltration*. Journal of Membrane Science, 2000. **180**(1): p. 157-169.
37. Hong, S., Krishna, P., Hobbs, C., Kim, D., Cho, J., *Variations in backwash efficiency during colloidal filtration of hollow-fiber microfiltration membranes* Desalination, 2005. **173**(3): p. 257-268.
38. Bourgeois, K.N., Darby, J.L., and Tchobanogious, G., *Ultrafiltration of wastewater: effect of particles, mode of operation and backwash effectiveness*. Water research, 2001. **35**(1): p. 77-90.
39. Ghidossi, R., Daurelle, J.V., Veyret, D., Moulin, P., *Simplified CFD approach of a hollow fiber ultrafiltration system*. Chemical Engineering Journal, 2006. **123**(3): p. 117.
40. Pellerin, E., Michelitsch, E., Darcovich, K., Lin, S., Tam, C.M., *Turbulent transport in membrane modules by CFD simulation in two dimensions*. Journal of Membrane Science, 1995. **100**(2): p. 139-153.

41. Geraldès, V., Semiao, V., et de Pinho, M.N., *Flow and mass transfer modelling of nanofiltration*. Journal of membrane science, 2001. **191**(1-2): p. 109-128.
42. Geraldès, V., Semiao, V., et De Pinho, M.N., *Integrated modeling of transport processes in fluid/nanofiltration membranesystems*. Journal of Membrane Science, 2002. **206**(1-2): p. 189-200.
43. Wiley, D.E. et Fletcher, D.F., *Techniques for computational fluid dynamics modelling of flow in membrane channels*. Journal of Membrane Science, 2003. **211**(1): p. 127.
44. Fletcher, D.F. et Wiley, D.E., *A computational fluids dynamics study of buoyancy effects in reverse osmosis*. Journal of Membrane Science, 2004. **245**(1-2): p. 175-181.
45. Alexiadis, A., Bao, J., Fletcher, D.F., Wiley, D.E., Clements, D.J., *Analysis of the dynamic response of a reverse osmosis membrane to time dependent transmembrane pressure variation*. Industrial engineering and chemistry research, 2005. **44**: p. 7823-7834.
46. Berman, A.S., *Laminar Flow in Channels with Porous Walls*. Journal of Applied Physics, 1953. **24**(9): p. 1232.
47. Yuan, S.W. et Finkelstein, A.B., *Laminar pipe flow with injection and suction through a porous wall*. Transaction of ASME, 1955. **78**: p. 719-724.
48. Belfort, G. et Nagata, N., *Fluid mechanics and cross flow filtration : some thoughts*. Desalination, 1985. **53**(1-3): p. 57-79.
49. Belfort, G., *Fluid mechanics in membrane filtration : Recent developments*. Journal of Membrane Science, 1989. **40**(2): p. 123-147.
50. Friedman, M. et Gillis, G., *Viscous flow in a pipe with absorbing walls*. Journal of Applied Mechanics, 1967. **34**: p. 819-827.
51. Mizushima, T., Takeshita, S., et Unno, G., *Study of flow in a porous tube with radial mass flow*. Journal of chemical engineering, 1971. **4**: p. 135-142.
52. Galowin, L.S. et de Santis, M.J., *Investigation of laminar flow in a porous pipe with variable wall suction*. AIAA, 1974. **12**: p. 1585-1594.
53. Marriott, J. et Sørensen, E., *A general approach to modelling membrane modules*. Chemical Engineering Science, 2003. **58**(22): p. 4975.
54. Benmachou, K., *Etude et modélisation du colmatage d'un filtre plissé*. 2005, Institut National Polytechnique de Toulouse: Toulouse.
55. Eloit, S., Watcher, D.D., van Tricht, I., Verdonck, P., *Computational flow modeling in hollow fiber dialyzers*. Artificial organs, 2002. **22**(7): p. 590-599.
56. Tarabara, V.V., *Computational fluid dynamics modeling of the flow in a laboratory membrane filtration cell operated at low recoveries*. Chemical Engineering Science, 2003. **58**(1): p. 239-246.
57. Damak, K., Ayadi A., Zeghmami, B., Schmitz, Ph., *Concentration polarisation in tubular membranes --a numerical approach*. Desalination, 2005. **171**(2): p. 139.
58. Oxarango, L., Schmitz, Ph., et Quintard, M., *Laminar flow in channels with wall suction or injection: a new model to study multi-channel filtration systems*. Chemical Engineering Science, 2004. **59**(5): p. 1039.
59. Ahmad, A.L., Lau, K.K., Abu Bakar, M.Z., Abd Shukor, S.R., *Integrated CFD simulation of concentration polarization in narrow membrane channel*. Computers & Chemical Engineering, 2005. **29**(10): p. 2087-2095.
60. Bessiere, Y., Fletcher, D.F., et Bacchin, P., *Numerical simulation of colloid dead-end filtration: Effect of membrane characteristics and operating conditions on matter accumulation*. Journal of Membrane Science, 2008. **313**(1-2): p. 52-59.
61. Noël, F., Schmitz, Ph., et Pratt, M., *Modélisation de la formation d'une couche de particules sur la paroi poreuse*. Proceedings 18ème Congrès Français de Mécanique, 2007.

- 62 Dolecek, P., Cakl, J., *Permeate flow in hexagonal 19-channel inorganic membrane under filtration and backflush operating mode*, Journal of Membrane science, 1998. **149**(2): p. 171-179.

Chapitre II : Matériel & Méthodes

II.1 Pilote de laboratoire : Le double bioréacteur à membranes immergées (DBAMI).

II.1.1 Caractéristiques du pilote.

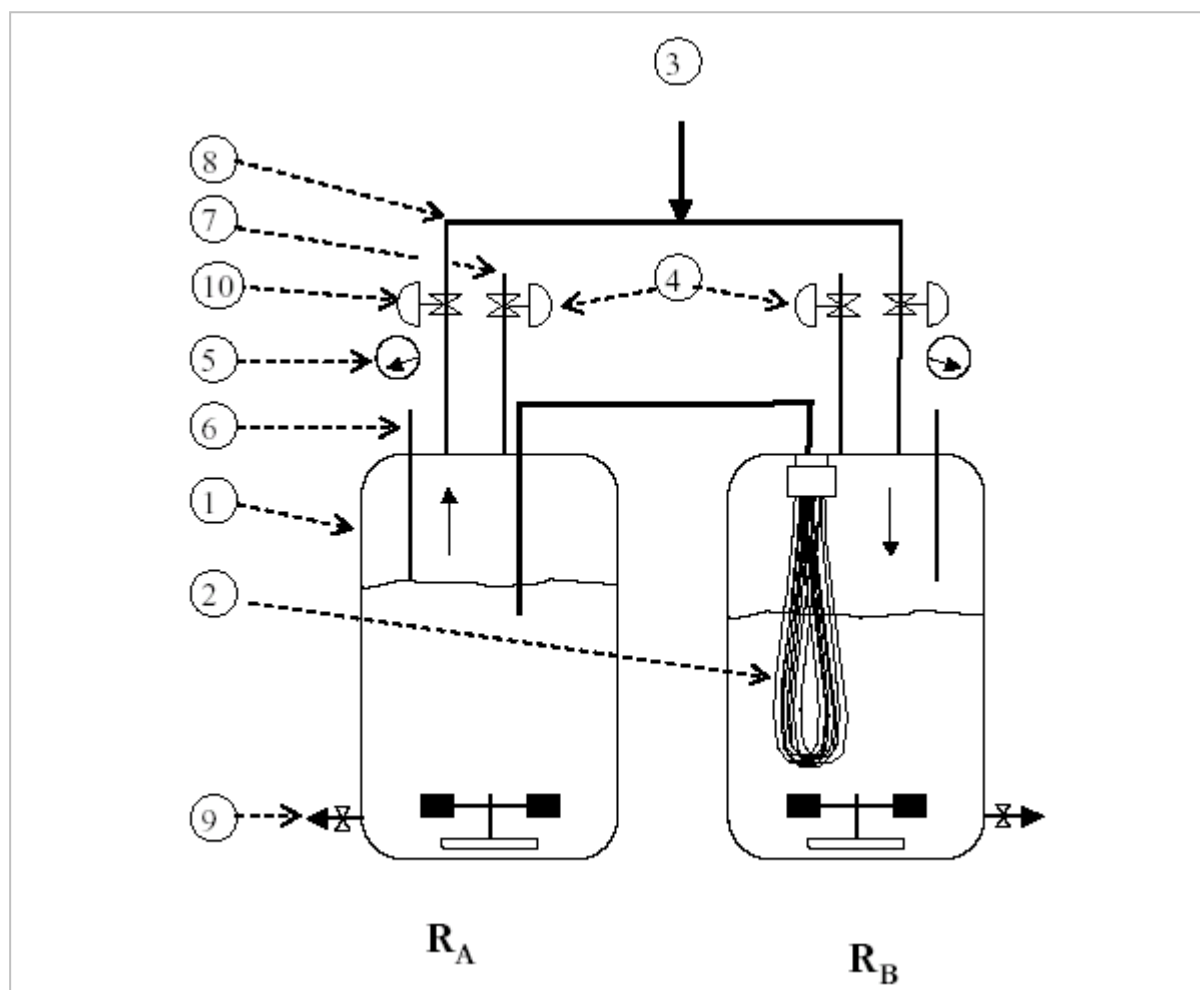


Figure II-1. Représentation schématique du double bioréacteur à membranes. 1 : bioréacteur Setric 2L, 2 : module membranaire de filtration, 3 : Air comprimé, 4 : Electrovanne de mise à la pression atmosphérique EV4, 5 : Capteur de pression, 6 : Sonde de niveau, 7 : Mise à la pression atmosphérique EV2, 8 : Entrée d'air, 9 : prélèvement d'échantillon, 10 : Electrovanne de mise à la pression de consigne EV1, EV3.

Le double bioréacteur à membranes immergées utilisé dans cette thèse est basé sur celui précédemment décrit par Salgado *et al.* (1998), les réservoirs initialement utilisés ayant été remplacés par des fermenteurs Setric™ de 2 litres équipés de dispositifs de mesure et de régulation de la température, ainsi que du pH (Figure II-1). Les données issues des mesures des conditions physico-

chimiques du milieu sont centralisées sur des cartes analytiques Setric™ permettant à l'opérateur un enregistrement et un contrôle précis.

L'homogénéisation du milieu est assurée par à une hélice de type Rushton simple entraînée par le bas, permettant une régulation précise de la vitesse d'agitation.

Les modules de filtration sont réalisés spécifiquement pour ce dispositif par la société Polymem. Ils sont fixés par l'intérieur du fermenteur sur la platine supérieure à l'aide d'une connexion vissée et étanchéifiée par un joint torique. Les caractéristiques de ces modules de filtration seront décrites dans le paragraphe II.2.2.

II.1.2 Amélioration et optimisation du dispositif pilote.

II.1.2.1 Raccords inter-réacteurs.

Les raccordements permettant au perméat de passer d'un réacteur à l'autre ont fait l'objet d'une attention particulière afin de pouvoir effectuer la connexion des deux parties dans des conditions d'hygiène rigoureuse, de façon aisée et en minimisant le volume mort. Dans la configuration initiale, l'opération de raccordement était une étape délicate et sensible aux contaminations et le matériau composant les tuyauteries n'était pas adapté aux conditions d'autoclavage (120 °C, 1 bar). En outre, leur volume mort était trop important et les pertes de charge dans ces tubes diminuaient les performances de filtration du système.

Les réacteurs ont donc été équipés de tuyaux tressés en acier-inox compatible avec des liquides biologiques aussi bien qu'avec des liquides de nettoyage. Leur raccordement est assuré par un raccord rapide anti-pollution HCB Staubli. Ces composants, grâce à leur face plane de raccord, assurent l'étanchéité et le maintien de la stérilité au moment de la connexion et de la déconnexion.

II.1.2.2 Sondes de niveau.

La caractéristique technique permettant l'inversion du sens de filtration repose sur les sondes de niveau présentes dans chaque réacteur. La gestion de la diminution du niveau de liquide en fonction des différents prélèvements a été prise en compte. Le volume filtré étant fixé par les sondes de niveau, les prélèvements en diminuant le volume de liquide dans les réacteurs, augmentent le volume de filtration. Une correspondance entre le volume prélevé et la variation de niveau dans les réacteurs a été établie. En conséquence, le prélèvement d'un volume de 50 mL dans un réacteur est

compensé par une immersion supplémentaire de la sonde de niveau de 1 cm de façon à conserver un volume échangé identique.

II.1.2.3 Modularité.

Le dispositif utilisé dans cette thèse est entièrement modulable. En effet, comme on peut le voir sur la Figure II-1 un module membranaire est en place dans le réacteur B. On peut aisément moduler cet arrangement pour que le module soit présent dans le réacteur A, ou disposer d'un deuxième module de filtration dans le réacteur adjacent. En d'autres termes, le pilote peut posséder un module de filtration dans chaque fermenteur (Figure II-2). Il faut également noter que le sens de filtration peut également être ajusté permettant soit une filtration des deux modules en sens inverse de filtration, ou reliées entre elles fonctionnant toutes les deux en mode Externe/Interne.

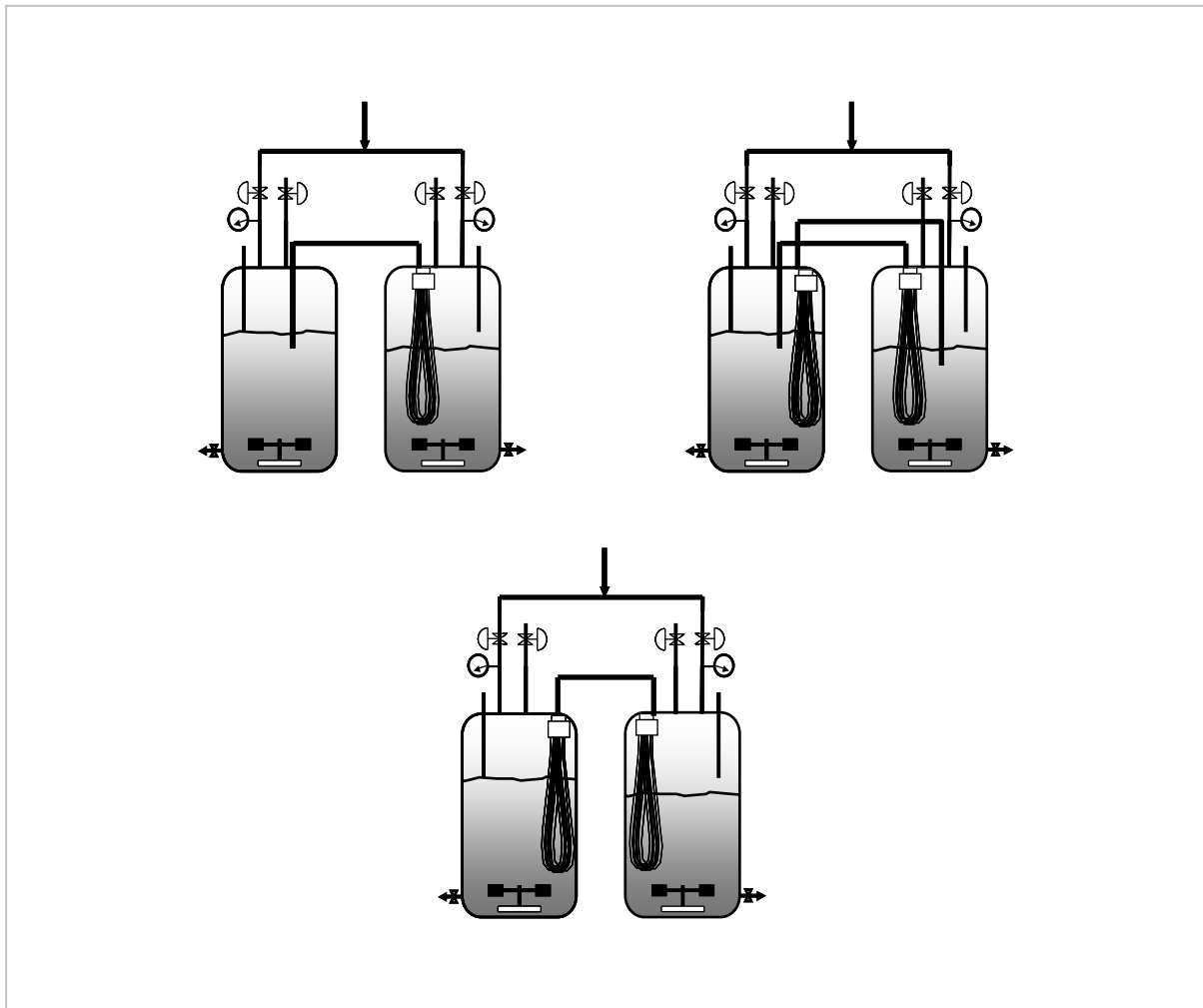


Figure II-2. Représentation des différentes possibilités d'arrangement du ou des modules de filtration.

II.1.3 Pression transmembranaire et capteur de pression.

La pression transmembranaire est régulée grâce à un détendeur en amont de deux électrovannes ASCA™ permettant de fixer de façon précise la pression de consigne.

Quand l'électrovanne EV1 est ouverte et qu'EV2 est fermée (mode filtration) (Figure II-3): le ciel gazeux du réacteur A passe à la pression de consigne, le volume de filtration (fixé par le positionnement des sondes de niveau) traverse donc le module de microfiltration de l'extérieur vers l'intérieur (mode Externe/ Interne). Une fois le niveau de liquide défini atteint dans le réacteur B, les sondes de niveau commandent aux électrovannes EV1 et EV2 de s'ouvrir, le ciel gazeux retourne donc à pression atmosphérique. EV3 s'ouvre pour admettre de l'air dans le réacteur B (avec EV4 fermée) et donc mettre le ciel gazeux à pression de consigne. Le milieu dispersant du réacteur B traverse alors le module de microfiltration de l'intérieur vers extérieur.

Le système de mesure de la pression des « ciels gazeux » est un capteur de pression différentiel Validyne™ model DP 15-46 de gamme 0,08 psi (0,01 bar) à 3200 psi (220 bar). Le principe de mesure est similaire à une gauge de pression (Figure II-4, gauche). Par contre, au lieu de faire une mesure avec la pression atmosphérique comme référence, des mesures différentielles sont effectuées contre une pression de référence spécifique fixée à 0 bar (Figure II-4, droite). Pour décrire cette pression différentielle les données sont exprimées en PSID (Pounds per Square Inch Differential).

Les variations de la pression dans les « ciels gazeux » des deux réacteurs sont enregistrées de façon à quantifier l'évolution des pressions transmembranaires en temps réel lors de la filtration grâce au logiciel d'acquisition ACQUIS développé au laboratoire. La fréquence d'acquisition du signal est de 100 ms Cette mesure en temps réel de la pression permet de déterminer les temps d'inversion des électrovannes lors de la mise à la pression de consigne des deux réacteurs. Les durées des phases de filtration et de rétrofiltration peuvent ainsi être déduites du signal enregistré.

En outre, c'est à partir de ce signal, connaissant le volume échangé entre les deux compartiments, que le débit de perméat moyen sur le cycle peut être évalué.

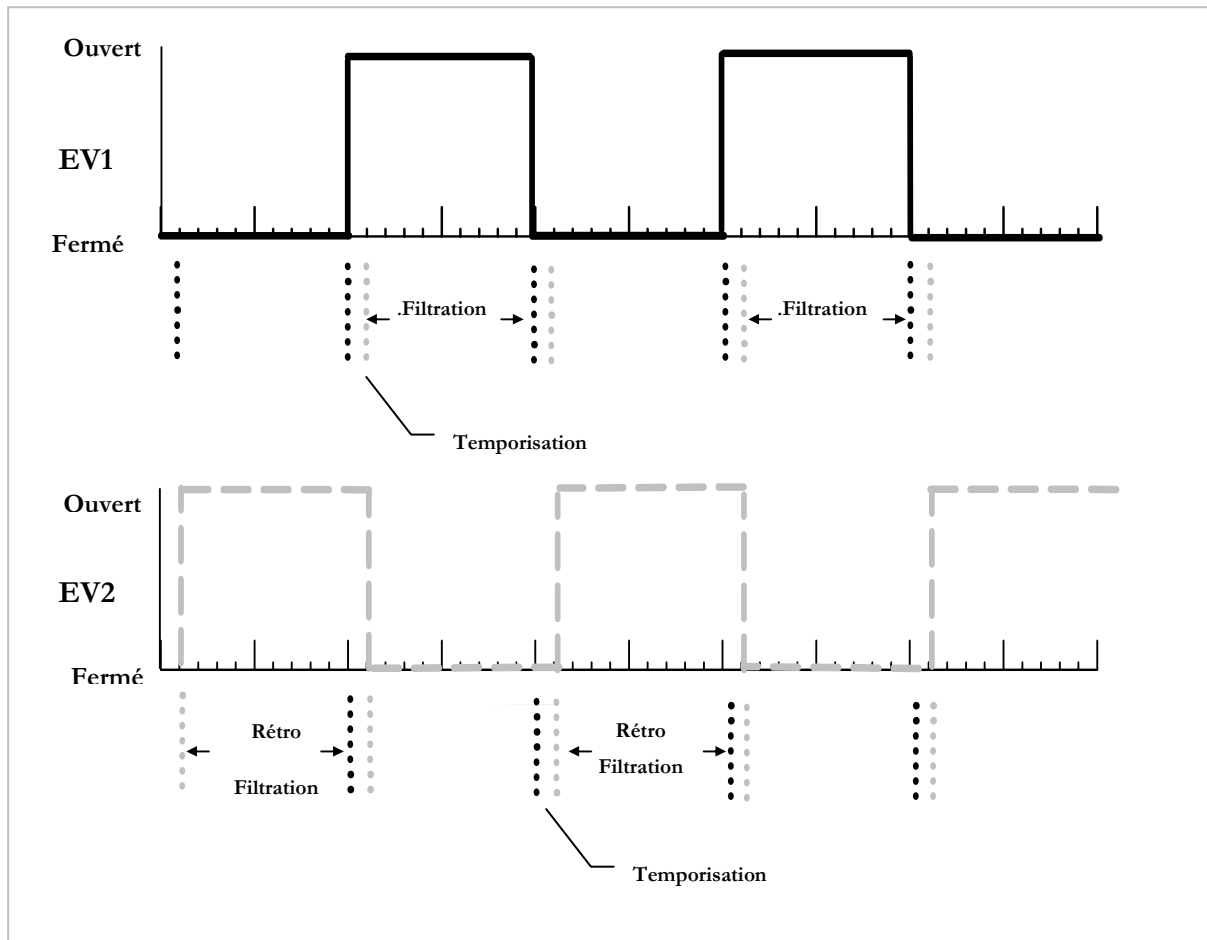


Figure II-3. Signal de contrôle envoyé aux électro vannes EV1 et EV2 permettant de produire le cycle de filtration et rétrofiltration.

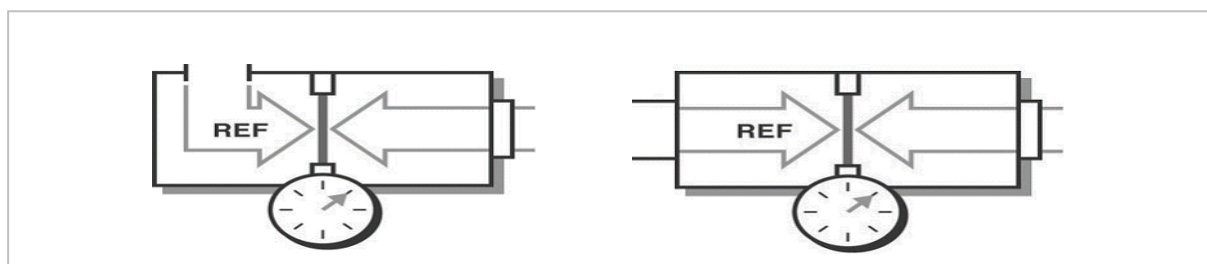


Figure II-4. Capteurs de pression ; Gauche : gauge de pression; Droite : capteur de pression différentiel.

Deux variables permettent de piloter le système :

- La pression d'alimentation en air comprimé P_{cons} ,
- Le volume filtré V_f qui déterminera le temps de filtration.

Un travail préalable de mise au point a été réalisé afin de caractériser et d'optimiser la mise en pression du réacteur. En effet, lors des premiers essais effectués sur le réacteur, une partie du cycle de filtration (ou de rétrofiltration) était nécessaire pour que le ciel gazeux atteigne la pression de consigne (Figure II-5). Le cycle de filtration ne s'effectuait donc pas à la pression demandée mais à une valeur intermédiaire et variable entre la pression atmosphérique et la pression de consigne:

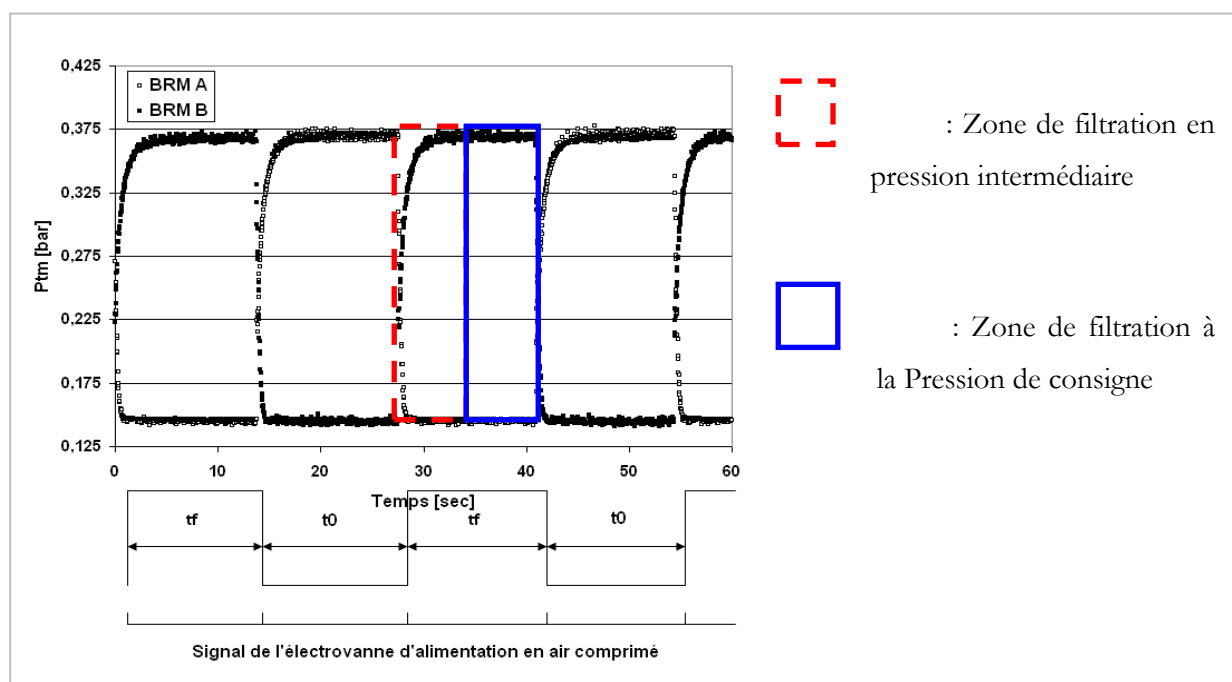


Figure II-5. Evolution du signal de pression enregistré lors de chaque cycle de filtration.

L'ajout d'un temporisateur ajustable sur chaque électrovanne d'entrée d'air a été proposé pour retarder le déclenchement de l'électrovanne d'une durée déterminée. Ainsi en plaçant cette durée à 4 s, la pression du ciel gazeux atteint la pression de consigne avant l'étape de filtration suivante qui est initiée par l'ouverture de l'électrovanne de mise à pression atmosphérique du réacteur adjacent.

II.2 Membranes et modules membranaires.

II.2.1 Membranes.

Les membranes, produites par la société PolymemTM, sont des fibres creuses de microfiltration en polysulphone. Le diamètre moyen des pores est de 0,1 μm , le diamètre interne des fibres de 0,25 mm et leur diamètre externe de 0,42 mm.

II.2.2 Modules membranaires.

Les modules membranaires utilisés, obtenus par l'assemblage en U des fibres emprisonnées à leur base par une résine, ont un diamètre de 30 mm et une longueur de 166 mm. Deux types de module, notés M1 et M2 sont utilisés au cours de ces études. Le Tableau II-1 regroupe leurs principales caractéristiques:

Tableau II-1. Caractéristiques des deux modules de filtration.

Nom du module	Diamètre moyen des pores (μm)	Nombres de fibres (-)	Surface efficace de filtration théorique interne/externe (m^2)	Surface efficace de filtration théorique externe/interne (m^2)	Perméabilité module neuf IE/EI ($\text{l.h}^{-1}.\text{m}^{-2}.\text{bar}^{-1}$)
M1	0,1	2800	0,30	0,45	790/410
M2	0,1	1400	0,15	0,30	890/710

Les modules de filtration sont livrés conditionnés dans du bisulfite de sodium à 10 g.L^{-1} . Un rinçage à l'eau osmosée est donc nécessaire avant leur utilisation. Un contrôle d'intégrité interne/externe et externe/interne ainsi qu'une mesure de perméabilité sont également réalisés lors de la réception et après chaque expérimentation. Le contrôle de la perméabilité est effectué avant chaque expérimentation et après chaque lavage chimique. Le contrôle consiste à mesurer le débit de filtration lors de la filtration d'eau osmosée à différentes pressions transmembranaires. Le contrôle de l'intégrité membranaire Interne/Externe consiste à injecter de l'air comprimé à l'intérieur des fibres (via le réacteur A - Figure II-1) et d'observer l'absence de bulle d'air sur la surface des fibres (réacteur B). Le contrôle de l'intégrité membranaire Externe/Interne consiste à injecter de l'air comprimé à

l'extérieur des fibres (via le réacteur B - Figure II-1) et d'observer l'absence de bulle d'air en sortie (réacteur A).

NB : Les perméabilités membranaires Interne/externe et Externe/Interne calculées sur la base du débit global du module ne sont pas égales bien que la perméabilité membranaire soit une propriété intrinsèque du matériau membranaire. Ceci devra être pris en compte dans le calcul du flux net de filtration.

II.2.3 Lavages chimiques.

Le développement d'une procédure de nettoyage chimique efficace requiert la prise en compte des caractéristiques physiques et chimiques des éléments colmatants prépondérants. Elle requiert aussi une connaissance du matériau membranaire et de sa compatibilité avec les réactifs utilisés. Les étapes de lavages chimiques effectués après chaque expérimentation, pour lutter contre tout phénomène de colmatage irréversible, sont issues d'une part de procédures utilisées couramment au laboratoire et de leur modification appliquée dans le cadre de ce pilote. Trois types de solutions sont utilisés.

Dans un premier temps, les réacteurs sont remplis avec une solution de chlore à $0,2 \text{ g.L}^{-1}$ et la filtration s'effectue avec un volume d'échange de 400 mL et une pression de 0,8 bar pendant 1 heure. Le liquide chloré permettant une désinfection de l'installation filtrante s'écoule donc dans le sens filtrant et en rétrofiltration. Les réacteurs, ainsi que le module de filtration, sont ensuite rincés à l'eau osmosée pendant 10 minutes avec les mêmes conditions de volume de filtration et de pression transmembranaire.

Une deuxième étape utilisant l'hydroxyde de sodium NaOH à 4 g.L^{-1} est ensuite réalisée, dans les mêmes conditions de volume d'échange et de pression transmembranaire. Cette étape permet un nettoyage des colloïdes inorganiques et d'une grande partie des composés colmatants d'origine organique et/ou biologique. Le temps de mise en contact et de fonctionnement du réacteur avec cette solution basique est de 2 heures. Comme précédemment, le réacteur est ensuite vidé et rincé à l'eau osmosée jusqu'à ce que le pH soit égale à celui de l'eau osmosée.

Enfin, une dernière étape de lavage acide utilisant de l'acide oxalique à 9 g.L^{-1} pendant 2 heures est réalisée permettant le nettoyage des sels de calcium (phosphate et carbonate) et des oxydes métalliques.

II.2.4 Mise en place d'un protocole de détermination du flux de filtration à niveau constant.

Un montage particulier a été réalisé afin de mesurer le flux global de filtration du module en le maintenant complètement immergé. Ce montage est utilisé dans l'article n°1. Les sondes de niveaux d'un bioréacteur contenant le module de filtration sont reliées à un contrôleur qui pilote une pompe péristaltique permettant de maintenir constant le niveau d'eau. Le perméat est récupéré dans un bécher posé sur une balance. La mesure du volume écoulé en un temps donné nous permet d'en déduire le débit, puis le flux de filtration.

II.2.5 Détermination et calcul des flux et flux net de filtration.

Lorsque le module de filtration est placé dans le réacteur B, le temps nécessaire pour que le volume de filtration passe du réacteur A au réacteur B est appelé temps de filtration t_f (durée du cycle moins la temporisation). Le temps nécessaire à ce même volume de passer du réacteur B au réacteur A est appelé temps de rétrofiltration t_b . Les flux moyens de filtration et de rétrofiltration sur un cycle sont donnés respectivement par les deux équations ci-dessous:

$$J_f = \frac{V_f}{(t_f \times S_{fi})} \quad \text{Équation II-1}$$

$$J_b = \frac{V_f}{(t_b \times S_{fe})} \quad \text{Équation II-2}$$

S_{fi} représente la surface de filtration interne et est égale à 0,3 m² pour le module de 2800 fibres et 0,15 m² pour le module 1400 fibres. S_{fe} représente la surface de filtration externe. Comme l'on peut le voir sur la Figure II-1, cette surface de filtration externe n'est pas entièrement disponible car le module de filtration n'est pas totalement immergé. Une évaluation de la différence de performance entre le niveau haut (avant la filtration) et le niveau bas a été réalisée (niveau atteint après la filtration de V_f) en utilisant le dispositif décrit en II.2.4. La différence mesurée (inférieure à 10 %) a permis, en supposant les caractéristiques du module identiques sur toute sa hauteur, d'évaluer une surface externe moyenne de 0,4 m² pour le module de 2800 fibres et 0,2 m² pour le module de 1400 fibres.

Un critère permettant d'évaluer les performances de filtration globale sur un cycle de filtration est proposé. Ce flux net J_{net} correspond à la différence entre le flux de filtration et le flux de rétrofiltration considéré sur un cycle complet :

$$J_{net} (l.h^{-1}.m^{-2}) = \frac{\left(\int_0^{t_f} J_f(t) dt - \int_{t_f}^{t_f+t_b} J_b(t) dt \right)}{(t_f + t_b)} \quad \text{Équation II-3}$$

En pratique, les flux instantanés $J_f(t)$ et $J_b(t)$ n'étant pas accessibles, l'acquisition du volume échangé au cours du temps étant impossible à réaliser de façon précise, seuls les flux globaux sur le cycle (filtration ou rétrofiltration) sont déterminés à partir des signaux de pression (détermination des durées des deux phases du cycle). Ainsi, le flux net est calculé de façon globale sur un cycle :

$$J_{net} (l.h^{-1}.m^{-2}) = \frac{J_f \cdot t_f - J_b \cdot t_b}{(t_f + t_b)}$$

II.2.6 Evaluation des résistances caractéristiques.

II.2.6.1 Définitions.

A partir de la relation de Darcy, on peut définir la résistance de la membrane R_m comme :

$$R_m = \frac{PTM}{\mu J_0} \quad \text{Équation II-4}$$

Au cours d'un cycle de filtration, les phénomènes de colmatage créent une résistance au transfert de matière supplémentaire qui vient s'ajouter à la résistance de la membrane. Cette résistance formée pendant le cycle de filtration est noté R_F . Son origine est aussi bien l'accumulation de particules à la surface de la membrane que les phénomènes de colmatage par adsorption. A la fin de la filtration, avant le cycle de rétrofiltration, la résistance totale au transfert de matière est donc $R_m + R_F$. En référence à la relation de Darcy appliqué à la filtration membranaire, si le flux à la fin de la phase de filtration est noté J_{fin} , il est possible de calculer la valeur de cette résistance totale

$$R_m + R_F = \frac{PTM}{\mu J_{fin}} \quad \text{Équation II-5}$$

On peut ainsi déduire la valeur de R_F :

$$R_F = \frac{PTM}{\mu} \times \left[\frac{1}{J_{fin}} - \frac{1}{J_0} \right] \quad \text{Équation II-6}$$

La Figure II-6 représente de manière schématique l'évolution du flux de filtration au cours de plusieurs cycles de filtration / rétrofiltration. Quatre flux de filtration caractéristiques sont représentés sur ce schéma :

- le flux de filtration à l'eau J_0
- le flux de filtration au début du cycle $J_{ini(n)}$
- le flux de filtration en fin de cycle de filtration $J_{fin(n)}$
- le flux de filtration en début de cycle suivant (n+1) : $J_{ini(n+1)}$

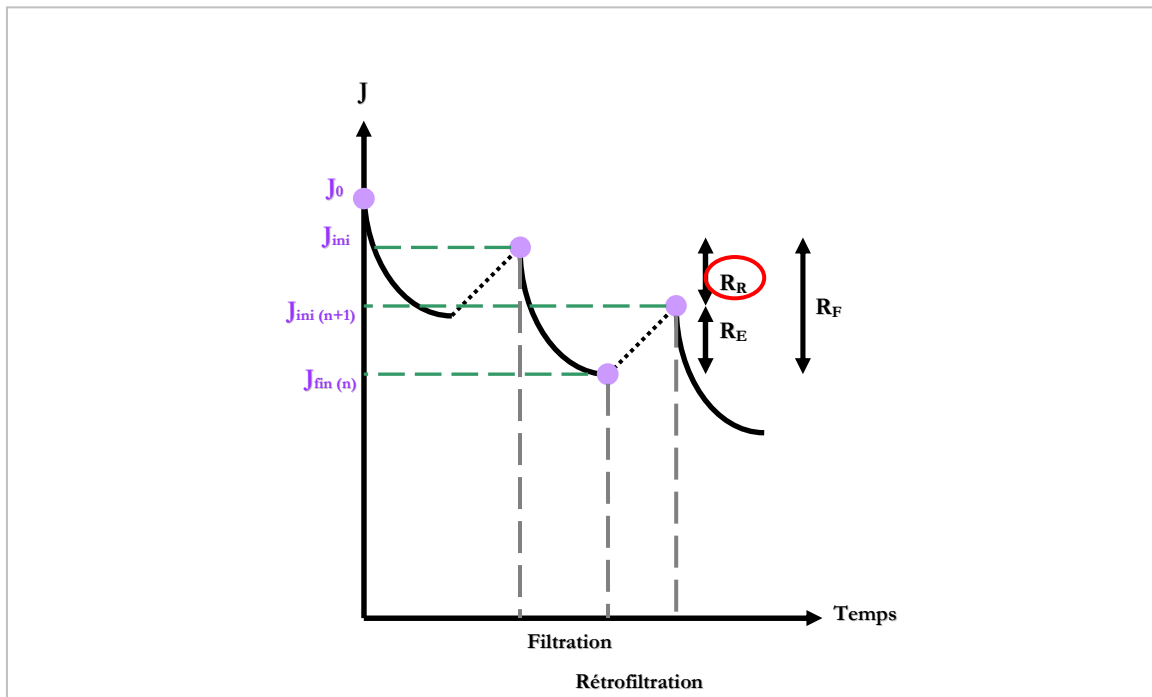


Figure II-6. Représentation de l'évolution du flux au cours du temps pour plusieurs cycles de filtration rétrofiltration.

En supposant que la viscosité ne varie pas et que la pression transmembranaire imposée est constante, l'évolution de la résistance au colmatage membranaire au cours de plusieurs cycles de filtration/rétrofiltration peut être estimée à travers trois types de résistances dont le calcul s'inspire des Equations 5 et 6. On distingue donc :

- la résistance due au colmatage formé pendant le cycle de filtration (n)

$$R_{F(n)} = \frac{PTM}{\mu} \times \left[\frac{1}{J_{fin(n)}} - \frac{1}{J_{ini(n)}} \right] \quad \text{Équation II-7}$$

- la résistance éliminée par le rétrolavage suivant le cycle de filtration (n) :

$$R_{E(n)} = \frac{PTM}{\mu} \times \left[\frac{1}{J_{fin(n)}} - \frac{1}{J_{ini(n+1)}} \right] \quad \text{Équation II-8}$$

La résistance éliminée correspond au colmatage enlevé par le rétrolavage ayant lieu juste après le cycle de filtration précédent. Il s'agit d'un colmatage qui peut s'éliminer de manière hydraulique, donc plus probablement composé de particules et de macrosolutés adsorbés sur les particules. Dans le cas d'une filtration Interne/Externe, si la résistance éliminée est inférieure à la résistance formée pendant le cycle de filtration R_F , cela veut dire qu'une partie du colmatage reste à l'intérieur des fibres à la fin du rétrolavage. Cette partie correspond au colmatage résiduel total (de résistance R_R) qui peut avoir deux origines : le colmatage irréversible dû à l'adsorption de macrosolutés ou composé solubles sur la membrane ou bien un colmatage que l'on peut nommer « résiduel particulaire » (Remize, 2006). Ce colmatage s'apparente à un colmatage réversible qui pourrait être éliminé par la rétrofiltration si la procédure mise en jeu faisait intervenir des conditions opératoires plus efficaces, en termes de durée de fonctionnement ou de conditions hydrodynamiques.

- la résistance résiduelle totale à la fin du rétrolavage qui suit le cycle de filtration (n) :

$$R_{R(n)} = \frac{PTM}{\mu} \times \left[\frac{1}{J_{ini(n+1)}} - \frac{1}{J_{ini(n)}} \right] \quad \text{Équation II-9}$$

Afin de prendre en compte la complexité de la configuration expérimentale utilisée et le fait que seuls les débits moyens dans chaque sens de filtration peuvent être mesurés, différentes hypothèses et simplifications ont dû être faites afin d'aboutir à une évaluation des résistances.

Les flux évalués sur la base du volume échangé et de la durée des phases peuvent être représentés par un profil «en escalier» puisque cette approche suppose implicitement des flux constants sur toute la phase considéré représentés en pointillés rouges (Figure II-7),

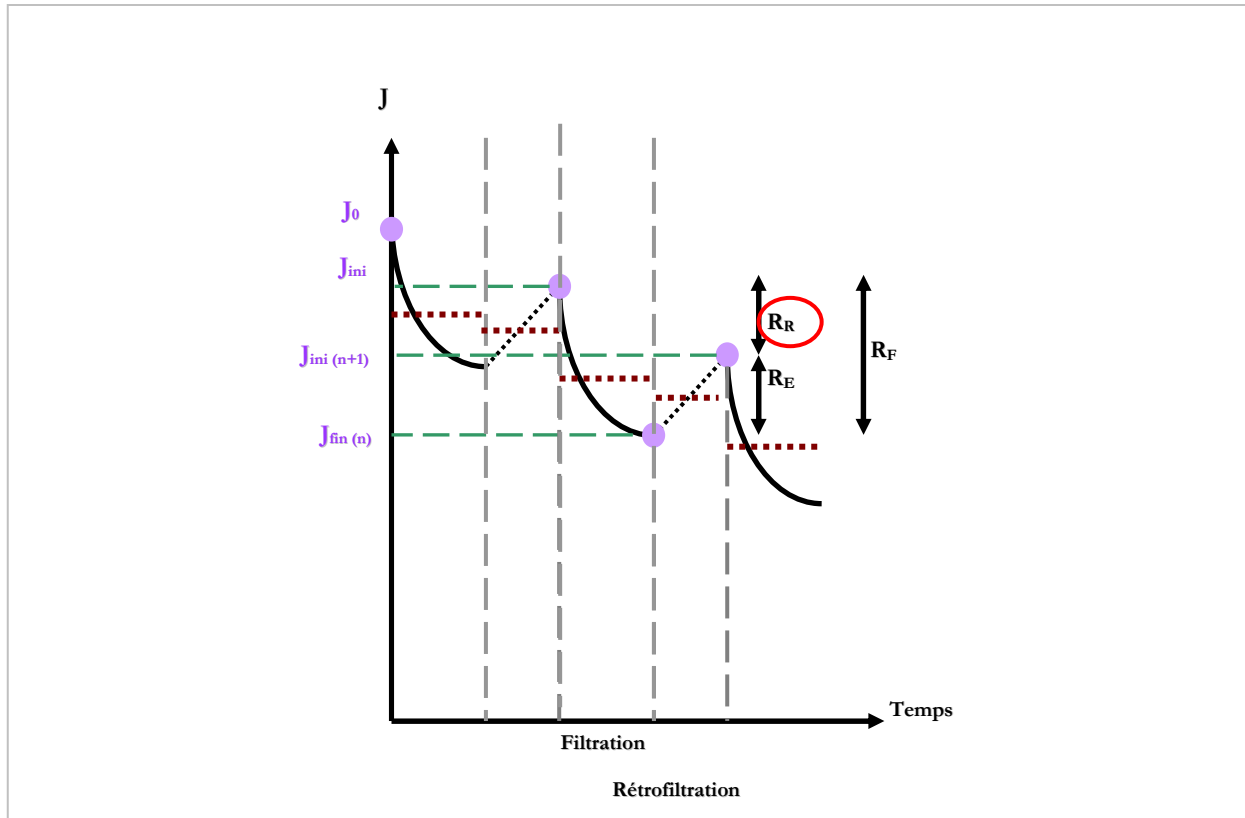


Figure II-7. Schématisation par un profil en escalier des flux évalués

L'évaluation des résistances ne peut donc être qu'approchée d'un cycle à l'autre en utilisant les valeurs moyennées des flux sur le cycle. Cette approximation reflète cependant, sur la base des flux moyens de filtration, l'évolution du dépôt et de ses caractéristiques au cours d'une expérience et permet également de rendre compte de l'efficacité relative du décolmatage en prenant en compte les flux moyens de rétrofiltration.

Ainsi il est possible d'aboutir à une évaluation qualitative :

- de l'évolution du colmatage par :

1 - l'évaluation de la résistance créée par le dépôt accumulé à t , obtenue à partir du flux de filtration à l'eau et du flux moyen de filtration à t

- 2 - la résistance créée par le dépôt accumulé entre deux cycles consécutifs, obtenue à partir du flux de filtration moyen pour un cycle et du flux moyen au cycle suivant $R_{F(n)}$
- de l'efficacité de décolmatage par:
 - 3 - la résistance éliminée $R_{e(n)}$ lors de la rétrofiltration, obtenue avec le flux moyen de rétro-filtration,
 - 4 - la résistance résiduelle $R_{r(n)}$, obtenue en comparant la résistance éliminée $R_{e(n)}$ et la résistance créée par le dépôt au cycle précédent $R_{F(n)}$.

Cependant, pour comparer la résistance à la filtration lors de la rétro filtration et la résistance moyenne à la filtration, il est nécessaire de prendre en compte la géométrie cylindrique des fibres pour lesquelles les surfaces externes et internes sont différentes. Compte tenu de la faible épaisseur de dépôt, la résistance éliminée sur la face filtrante, sera calculée à partir la résistance issue du flux de rétrofiltration, en prenant en compte la proportionnalité des surfaces interne et externe des fibres.

II.3 Préparation des milieux modèles et milieux de culture.

II.3.1 Milieux modèles.

II.3.1.1 Levures réhydratées.

Une masse de levures sèches déterminée en fonction de l'expérience envisagée (*Sacharomyces cerevisiae* active sèche, *Lessaffre*) est réhydratée dans 400 ml de PBS (Phosphate Buffer saline, Tampon Phosphate salin) dans des pots à centrifuger Nalgène de 500 mL, pendant 10 min sous agitation constante. Le PBS est obtenu en mélangeant 80 g de NaCl, 2 g de KCl, 14,4 g de Na_2HPO_4 et 2,4 g de KH_2PO_4 dans 10 litres d'eau osmosée, puis tamponnée à $\text{pH} = 7,1$ à l'aide d'une solution de NaOH à 10 mol.L^{-1} . Les levures ainsi réhydratées sont ensuite lavées par centrifugation à 5000 tr/mn (4424 g) l'aide d'une centrifugeuse Beckman, modèle Avanti 20 g. Le surnageant est ensuite éliminé et le culot re-suspendu dans 400 mL de PBS. Cette procédure est réalisée trois fois.

II.3.1.2 Solutions de BSA (protéines).

La BSA est l'une des protéines extraites du sérum de bovin les plus utilisée en biotechnologie aussi bien comme agent diluant ou bloquant dans les tests ELISA ou comme protéine standard dans l'étalonnage d'une mesure quantitative de protéine. Le type de BSA utilisé dans cette thèse est aussi appelée fraction V. En effet, cette protéine est retrouvée dans la cinquième fraction de purification de la méthode d'Edwin Cohn utilisant les différentes caractéristiques de solubilité des protéines du plasma. Elle possède un nombre de résidus d'acide aminés égal à 607, un poids moléculaire de 69323,4 Da et un point isoélectrique dans l'eau de 4,7. La BSA a donc une charge globale négative car le tampon utilisé pour la dilution est du PBS à $\text{pH} = 7,1$.

Pratiquement, 4 g d'Albumine de sérum bovin sont dilués extemporanément dans une fiole jaugée de 2 litres avec la solution de PBS.

II.3.1.3 Mélanges Levures réhydratées/BSA .

Le culot de la troisième étape de lavage des levures est suspendu dans les deux litres de BSA préparés comme ci-dessus. Afin de limiter les phénomènes qui pourraient être liés à l'adsorption de la BSA sur les levures réhydratées, la solution ainsi préparée est utilisée extemporanément.

II.3.2 Microorganismes et conditions de culture.

II.3.2.1 Microorganismes.

Deux micro-organismes ont été cultivés au cours de ce travail : la levure *Yarrowia lipolytica* ainsi que la bactérie *Lactococcus lactis*.

II.3.2.2 Milieux de culture.

Un milieu de culture semi-synthétique à base d'extrait de levure (Yeast Extract Medium) et de sels a été utilisé pour les travaux en conditions biologiques réelles (Tableau II-2). La stérilisation s'effectue par autoclavage (120°C, 20 minutes). Une solution de glucose concentrée (20X) est préparée et stérilisée par autoclavage à part puis ajoutée au reste de la solution.

Chaque bioréacteur est rempli avec 1600 ml d'eau osmosée, puis autoclavé. Après cette étape de stérilisation les réacteurs sont reliés via les raccords Staubli HCB. Une mesure d'intégrité membranaire est réalisée suivit d'une mesure de perméabilité. Cette étape est nécessaire pour s'assurer que le procédé de stérilisation n'a pas endommagé le module membranaire ou modifié sa fixation. L'eau est ensuite remplacée par le milieu YEM + glucose par l'intermédiaire d'une pompe péristaltique.

Tableau II-2. Composition du milieu de culture YEM

Composés	Concentration (g.L ⁻¹)
Glucose	20,0
KH ₂ PO ₄	9,0
K ₂ HPO ₄	7,5
MgSO ₄	0,2
MnSO ₄	0,005
Extrait de levures	10,0

II.3.2.3 Conservation des souches.

Yerowia hypolitica et *Lactococcus lactis* ont été cultivées en milieu YEM, récoltées en phase exponentielle de croissance et stockées à $-80\text{ }^{\circ}\text{C}$ dans des cryotubes avec 20 % de glycérol.

II.3.2.4 Précultures.

Les précultures de *Lactococcus lactis* ont été réalisées dans des fioles stériles serties avec un bouchon de butyle imperméable à l'oxygène, préalablement autoclavées (121°C , 20 mn). Les précultures de *Yerowia hypolitica* ont été réalisées dans des fioles d'Erlenmeyers cotonnés.

Pour la préculture initiale de bactérie (*Lactococcus*), une fiole estensemencée à 1,5 % V/V à partir du stock glycérolé et incubé à $30\text{ }^{\circ}\text{C}$ sous agitation. Pour la préculture initiale de levure (*Yerowia*), un erlenmeyer estensemencé à 4% V/V également à partir du stock glycérolé et incubé à 30°C sous agitation. Une nouvelle fiole ou un nouvel erlenmeyer est ensuiteensemencé à 1% V/V avec les cellules en phase exponentielle de croissance ainsi obtenues. Cette opération est répétée de façon à avoir le volume nécessaire pour l'inoculation de la culture en fermenteur. Les niveaux d'inoculation et les durées des précultures successives sont ajustés pour que les cellules soient en phase exponentielle de croissance lors des inoculations ultérieures.

Les cellules issues de la dernière préculture sont directement inoculées dans le fermenteur à 3% V/V afin d'obtenir la concentration initiale de biomasse désirée.

II.3.2.5 Cultures discontinues en bioréacteur à membranes.

Le module Setric permet de réguler les différents paramètres environnementaux. L'agitation est fixée à 300 tr/mn et la température maintenue constante à $30\text{ }^{\circ}\text{C}$ par une résistance chauffante et un circuit de refroidissement par circulation d'eau. Il est important de remarquer qu'en raison des variations cycliques de la pression, dans sa configuration actuelle il n'est pas possible d'aérer le réacteur de façon traditionnelle par l'injection d'air comprimé dans le milieu.

De manière pratique, avant l'inoculation les deux fermenteurs contenant 1600 ml de milieu stérile, une mesure de flux net initial est réalisée. Les réacteurs sont ensuite isolés l'un de l'autre par déconnection des raccords rapides. L'inoculum est ajouté au fermenteur A. Les deux réacteurs sont ensuite reconnectés de manière stérile.

Pour les expériences de filtration de milieux de culture en phase stationnaire, après des précultures et cultures effectuées comme décrit précédemment, une culture finale est réalisée dans deux fioles d'Erlenmeyers de 5 litres comprenant chacun 2 litres de milieu. En phase stationnaire de croissance ($t=12h$), la totalité du milieu de la première fiole d'Erlenmeyer est centrifugé à 5000 tr/min (4424 g) et est versé dans le réacteur A. Le second réacteur contenant le module de filtration est rempli avec 1600 ml du milieu entier contenu dans le deuxième erlenmeyer. Les réacteurs sont ensuite connectés.

II.4 Techniques analytiques mises en œuvre.

Les analyses effectuées diffèrent selon les fluides étudiées (suspensions modèles de BSA, levures réhydratées, BSA/levures réhydratées, milieux de fermentation).

II.4.1 Méthodes générales d'analyse des suspensions de microorganismes.

II.4.1.1 Densité optique .

Cette mesure est réalisée avec un spectrophotomètre Biochrom Libra S4. La mesure consiste à introduire un échantillon du milieu dans une microcuve de 1 mL avec une dilution correcte (gamme de l'appareil de 0,2 à 0,8 unité d'absorbance) et faire la mesure de la Densité Optique(DO) à 620 nm pour les cultures ou suspensions de *Saccharomyces cerevisiae* et 580 nm pour les cultures de *Yarrowia lipolytica* et *Lactococcus lactis*.

II.4.1.2 Masse sèche et détermination de la concentration cellulaire.

Une membrane polyamide plane circulaire de 22 mm de diamètre, à 0,2 μm de taille de pore est au préalable séchée à une température de 60 °C, 24 heures sous 200 mm d'Hg, puis pesé permettant la détermination de la masse sèche du filtre m_0 . Des volumes définis de 5 à 10 ml d'échantillons, prélevés du réacteur sont filtrés et séchés dans les mêmes conditions que précédemment, puis pesés m_1 .

La différence de masse entre le filtre nu et le filtre + biomasse :

$$m = m_1 - m_0$$

Équation II-10

permet de déterminer la masse de biomasse (m) contenue dans le volume filtré, puis de calculer la concentration en grammes de cellules par litre de milieu.

II.4.2 Mesures spécifiques aux fluides modèles levures réhydratées et BSA.

II.4.2.1 Suspension de levures.

La détermination des caractéristiques de la suspension comprend plusieurs mesures, en particulier la concentration, la répartition de la taille, la viabilité.

Granulométrie laser et analyses du diamètre moyen des levures réhydratées.

Afin d'évaluer l'homogénéité de la suspension de levures, la mesure du diamètre moyen des levures en suspension est réalisé à l'aide d'un granulomètre laser Mastersizer 2000 (Malvern instrument SA) possédant une gamme de mesure allant de 0,02 μm à 2000 μm . La granulométrie laser est une technique basée sur la diffraction de la lumière. Elle s'appuie sur la théorie de Fraunhofer qui utilise les hypothèses suivantes :

Les particules sont considérées comme sphériques, non poreuses et non opaques. Elles possèdent un diamètre supérieur à la longueur d'onde utilisé et sont animées d'un mouvement aléatoire. Lorsqu'un faisceau laser éclaire une particule, on peut observer des franges de diffraction. La théorie de Fraunhofer lie l'intensité du rayonnement diffracté et l'angle de diffraction à la taille des particules. En d'autres termes, plus la particule est grosse, plus elle dévie la lumière, et plus l'angle de déviation par rapport à la propagation sera faible. Dans le cas où le diamètre des particules est inférieur à la longueur d'onde, la théorie de Fraunhofer n'est plus valable et on utilise la théorie de Mie. On suppose que le faisceau laser est diffracté par les particules, mais qu'il est également réfléchi et diffusé. La lumière se propage donc jusqu'à ce qu'il y est réfraction du milieu de propagation. Le laser arrivera sur le détecteur ayant subi plusieurs variations de direction de propagation. Il est donc nécessaire de connaître les propriétés optiques des particules et du milieu de dispersion.

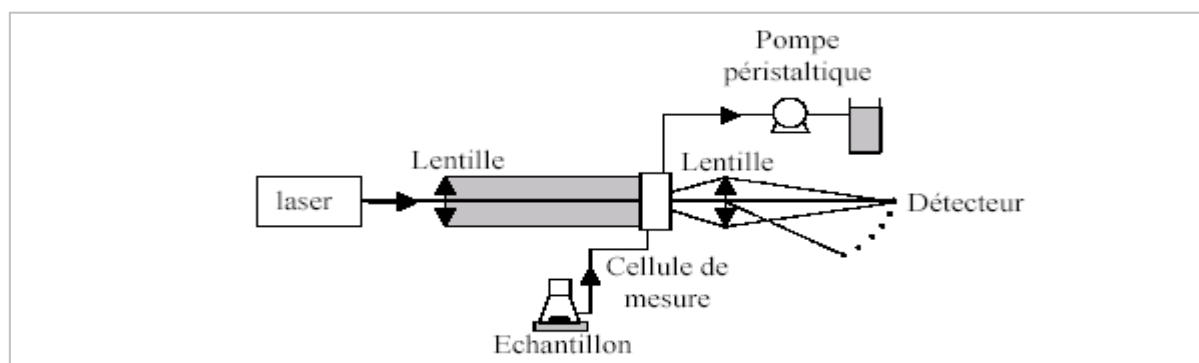


Figure II-8. Représentation schématique du principe du granulomètre laser

Dans la pratique, 2 ml d'échantillon sont prélevés et dilués dans 50 mL de PBS. L'appareil réalise ensuite une mesure de bruit de fond afin d'enregistrer les phénomènes de diffraction engendrés par le diluant. Puis, la solution est injectée dans la cellule de mesure, chaque particule passant devant le faisceau lumineux dévie la lumière qui est ensuite analysée par les détecteurs. La vitesse d'agitation est constante durant toutes les mesures. Le traitement des données permet d'obtenir une répartition de la taille des particules dans l'échantillon.

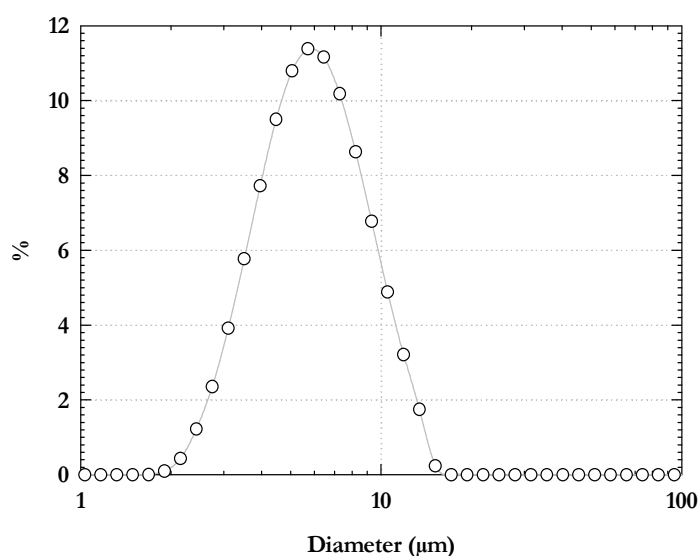


Figure II-9. Répartition du diamètre moyen des levures réhydratées dans la suspension.

Viabilité :

L'estimation de la viabilité des levures est réalisée par la méthode de PIERCE (1970) basée sur la décoloration du bleu de méthylène qui traduit l'intégrité de l'enveloppe cellulaire et l'activité de la déshydrogénase intracellulaire. Le résultat, bien que relatif à une seule enzyme, est considéré comme le témoin de l'activité globale des cellules, et de leur viabilité.

Pour cela, un volume de suspension cellulaire est ajouté à un volume de colorant. Après 5 minutes de contact, la suspension au microscope est observée (objectif x 40) sur une lame de Thoma.

II.4.2.2 Mesures relatives à la caractérisation de la BSA.**Zetasizer et mesure de la taille des agrégats de BSA :**

La gamme de mesure du granulomètre laser n'est pas adaptée pour mesurer des tailles de particules avoisinant la dizaine de nanomètre. Aussi, afin d'évaluer également l'homogénéité de la solution de BSA, le zetasizer mesurant la taille de particules dans un liquide jusqu'à moins d'un nanomètre est utilisé. Cette technique utilise l'observation du mouvement thermique, ou le mouvement brownien de la particule. La taille des particules est déterminée en analysant la diffusion de la lumière du laser qu'elles induisent et en déterminant le coefficient de diffusion correspondant. La taille des particules est déduite grâce à la relation de Stokes-Einstein (ci dessous). Cette méthode est appelée diffusion dynamique de la lumière.

$$D = \frac{k_B T}{6\pi\eta R_H} \quad \text{Équation II-11}$$

avec K_B constante de Boltzman, η viscosité du milieu, et T : la température

Dans la pratique, 1 mL d'échantillon est introduit dans une cuve et placé dans le zetasizer, en face du trajet optique du laser. L'appareil mesure les fluctuations d'intensité du laser en fonction du temps, qui sont dépendantes du mouvement brownien, lui même corrélé à la taille des particules. On mesure la perte de corrélation de la position avec le temps. Si les particules sont grandes, le signal change lentement et la corrélation persiste longtemps. Contrairement, si les particules sont petites, elles bougent rapidement et la corrélation n'est plus satisfaisante.

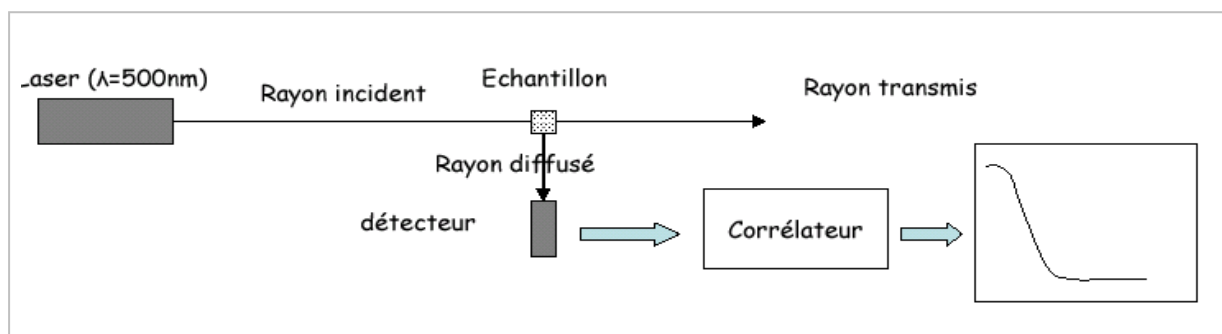


Figure II-10. Représentation schématique du principe d'une mesure de diffusion dynamique de la lumière pour la détermination de la taille de particules.

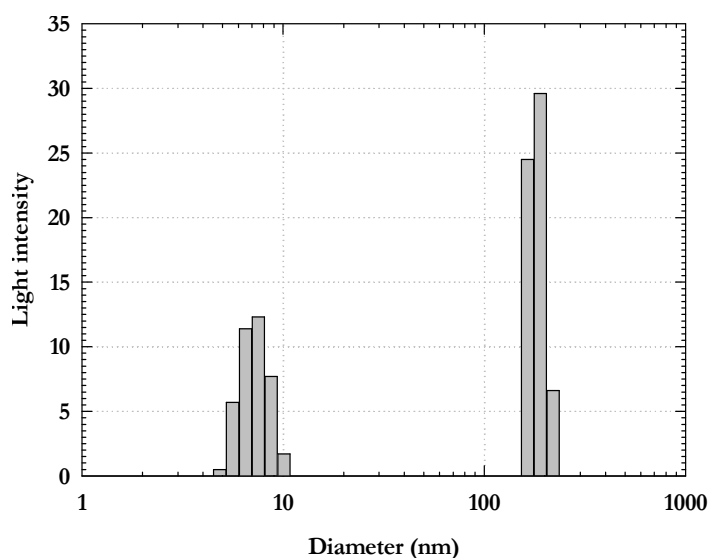


Figure II-11. Répartition du diamètre moyen des levures réhydratées dans la suspension.

Dosage des protéines :

La technique utilisée lors du dosage des protéines solubles est la micro-méthode de Bradford commercialisée par Biorad™. Le principe repose sur la liaison du Bleu brillant de Coomassie® sur des résidus d'acides aminés basiques et aromatiques par des interactions non-covalentes (ponts hydrogène, interactions hydrophobes et interactions ioniques), en particulier l'arginine. Ainsi sa longueur d'absorption maximale augmente de 465 nm (rouge) à 595 nm (bleu).

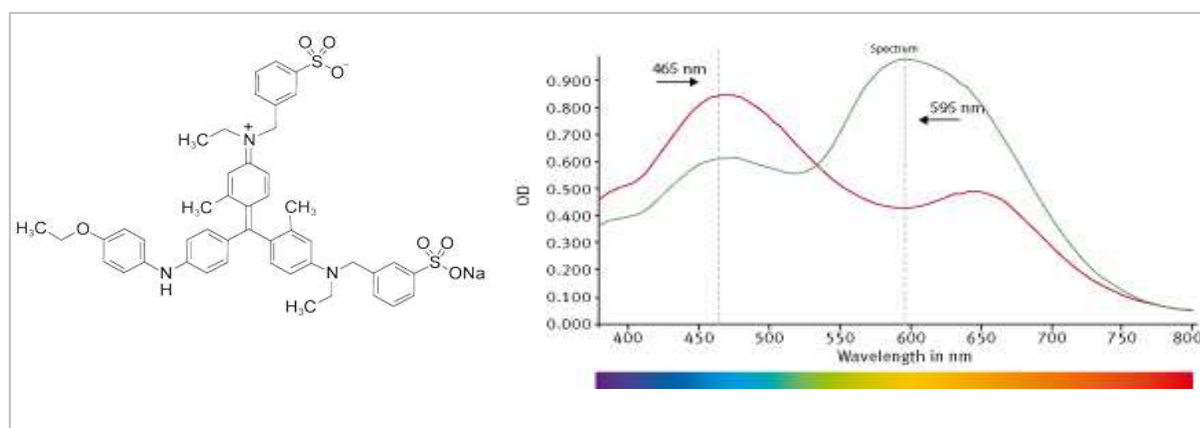


Figure II-12. Formule développée du Bleu de Coomassie et représentation de l'augmentation de la longueur d'onde suite à son interaction avec les résidus d'acide aminé (source Biorad).

En réponse à une variation de la concentration en protéines solubles, l'intensité de coloration varie de la même manière. Une mesure de l'absorption à 590 nm avec un spectrophotomètre Synergy HT en comparaison avec une courbe d'étalonnage permet de déterminer la concentration en protéines solubles.

Pratiquement, pour les milieux modèles BSA/levures, des échantillons de 1 mL sont prélevés et centrifugés 10 mn à 5000 tr/mn. Le surnageant est récupéré et congelé immédiatement. Le dosage est ensuite réalisé sur l'ensemble des prélèvements d'une même expérimentation.

II.4.3 Détermination de la concentration en glucose.

La teneur en glucose est mesurée à l'aide d'un analyseur biochimique à enzymes fixées YSI 2700 Select). Dans cet analyseur, l'enzyme glucose oxydase agit sur le glucose du milieu en libérant du peroxyde d'hydrogène qui est alors mesuré par ampérométrie. La gamme linéaire de cet instrument se situe entre 0 et 0,25 g/L et l'erreur est de l'ordre de 2 à 5 % (donnée constructeur).

II.4.4 Evaluation du pouvoir colmatant.

Il s'agit ici de caractériser le comportement colmatant des milieux modèles et des milieux de culture vis-à-vis d'un référentiel de filtration standard. A partir d'un prélèvement de 100 mL de milieux de fermentation, 50 mL sont dédiés à la caractérisation de la filtrabilité du moût de

fermentation entier, et 50 mL sont centrifugés 10 mn à 5000 tr/mn (5429 g) pour de caractériser celui du surnageant.

Afin de conserver les mêmes interactions physico-chimique entre le milieu et le matériau membranaire, les membranes planes utilisées sont également en polysulfone et ont une taille moyenne de pores de 0,1 μm . La cellule est très légèrement agitée afin d'éviter toute décantation de matière. La surface de filtration est de 0,017 cm^2 avec un volume de cellule de 50 cm^3 . La filtration est réalisée en mode frontal continu. Un circuit d'air comprimé relié à un manomètre permet de travailler à pression constante (0,5 bar).

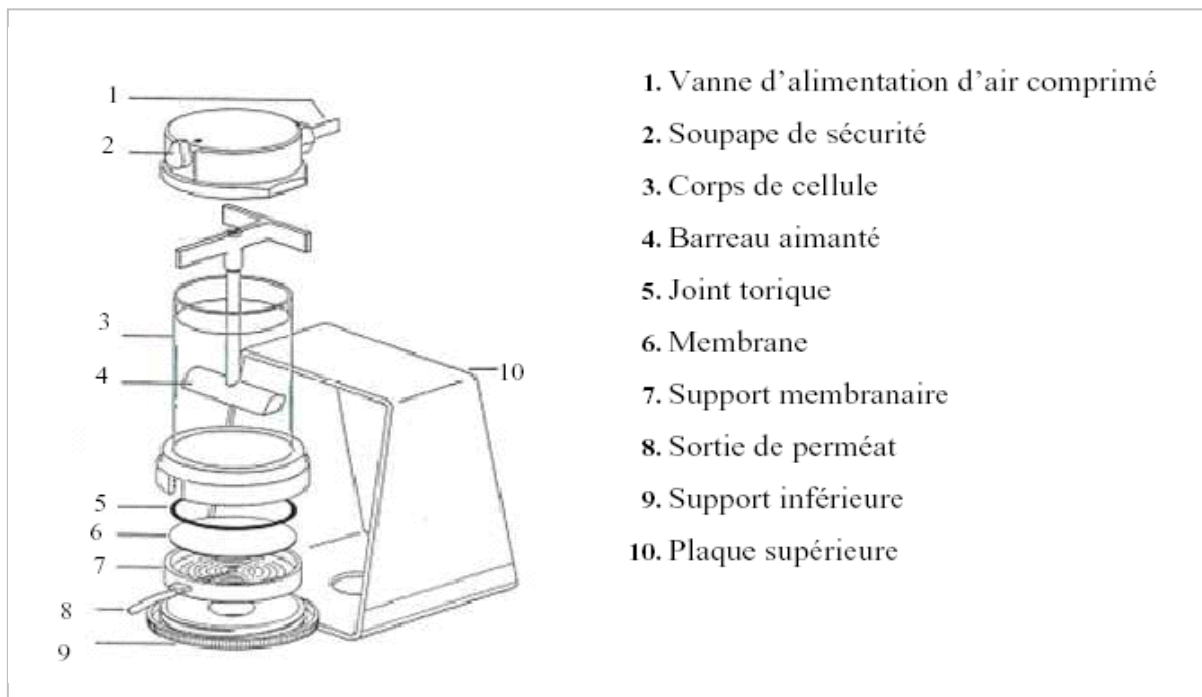


Figure II-13. Schéma de la cellule de filtration frontale.

En l'absence de colmatage, le flux de perméat d'un solvant pur est décrit par la loi de Darcy :

$$J = \frac{PTM}{\mu Rm} \quad \text{Équation II-12}$$

avec PTM la pression transmembranaire, μ la viscosité du perméat, Rm la résistance hydraulique de la membrane. Lorsque un dépôt se forme en surface membranaire, une résistance additionnelle apparaît se traduisant par une diminution du flux de perméat dans ce cas de filtration à pression constante.

$$J = \frac{PTM}{\mu(Rm + Rc)} \quad \text{Équation II-13}$$

Dans le cadre de ces essais de filtration frontale, avec l'hypothèse d'une rétention complète, les macrosolutés sont déposés sur la surface de la membrane augmentant Rc proportionnellement avec le volume filtré V et la masse de dépôt par unité de surface :

$$Rc = \alpha.mc = \alpha.C.\frac{V}{S} \quad \text{Équation II-14}$$

α représente la résistance hydraulique de colmatage par unité de masse et est appelé résistance spécifique. Par intégration et substitution, l'équation de filtration par dépôt à pression constante peut être écrite :

$$\frac{t}{V} = \frac{\alpha.C.\mu_{(T)}}{2.PTM.S^2}.V + \frac{Rm.\mu_{(T)}}{PTM.S} \quad \text{Équation II-15}$$

avec:

C : la quantité de matière déposée [Kg.m⁻³]

$\mu_{(T)}$: la viscosité dynamique du fluide traité [Pa.s].

Le premier terme en $\alpha.C$ tient compte de la résistance spécifique apporté par le dépôt formé lors de la filtration de l'échantillon, alors que le second terme, en Rm, se réfère au support membranaire utilisé.

Remarque : la viscosité dynamique est calculée pour une température T (°C) donnée du fluide, donc pour chaque mesure. Une hypothèse simplificatrice est à faire quant à la nature du fluide. Nous considérons en effet qu'il s'agit d'eau et nous pouvons appliquer l'équation :

$$\mu_{(T)} = 1,002.\exp\left[3,056\frac{(20-T)}{(T+105)}\right] \quad \text{Équation II-16}$$

Il est possible de déterminer les valeurs de $\alpha.C$ (en m⁻²) en traçant l'évolution de t/V en fonction du volume V filtré, puis en calculant la pente (a) de la droite tracée.

$$\alpha.C = \frac{a.PTM.S^2}{\mu_{(T)}}.2 \quad \text{Équation II-17}$$

La résistance spécifique du dépôt α (m.Kg⁻¹) en découle simplement si l'on connaît la teneur en matière en suspension, C. Par la suite, la masse de dépôt par unité de surface $m_{(s)}$ permet d'écrire la résistance du dépôt R_g (m⁻¹) sous la forme suivante :

$$R_g = \frac{\alpha.m_{(s)}}{S} = \frac{\alpha.C.V_{(f)}}{S} \quad \text{Équation II-18}$$

Chaque milieu biologique ou milieu modèle est donc caractérisé par sa valeur de $\alpha.C$ pour le système de référence à la pression de référence de 0,5 bar.

Chapitre III : Impact de la densité de
fibres ou compacité sur les performances
de filtration du module : approche
numérique.

III.1 Présentation du travail, objectifs et approche.

Les performances du module de microfiltration, et plus précisément, la diminution du flux de filtration, au sein du bioréacteur à membrane, dépendent des conditions hydrodynamiques locales régnant à l'intérieur de la fibre mais également de l'environnement hydrodynamique plus ou moins confiné en périphérie de la fibre. Ces deux facteurs sont directement liés à la compacité du module qui est déterminée par la densité de fibres.

Le but de ce chapitre est de simuler les variations de vitesses de filtration et d'écoulement au sein du module de fibres creuses, afin d'en prédire ses performances en fonction de sa géométrie et de la densité de fibres. L'outil numérique développé lors de cette étude permet d'effectuer une analyse de sensibilité des paramètres géométriques afin d'améliorer sa conception dans le but d'optimiser les performances de filtration. Le code de calcul COMSOL Multiphysics est apparu particulièrement adapté pour traiter ce type de problème puisqu'il permet le couplage du modèle de Navier-Stokes (valable pour le sous-domaine fluide) et du modèle de Darcy-Brinkman (valable pour le sous domaine poreux). Le modèle de Darcy-Brinkman est né de l'étude, par Brinkman, des limites de l'équation de Darcy dans le cas de très fortes perméabilités. Pour rendre compte de la capacité de l'écoulement à transmettre une force par le biais de la contrainte visqueuse, dans le cas d'un fluide chargé de particules, Brinkman ajoute un terme à l'équation de Darcy en introduisant une grandeur effective, μ_{eff} . Cette grandeur traduit, à l'échelle macroscopique, l'effet de la contrainte visqueuse locale. La viscosité effective dépend à la fois de la viscosité du fluide et de la géométrie du milieu poreux. Notons que, dans notre cas, le terme additionnel de Brinkman a peu, voire pas, d'impact sur la qualité de la modélisation, mis à part une meilleure prise en compte des parois adjacentes au milieu poreux (vitesse tangentielle nulle).

Tout d'abord, un modèle bidimensionnel obtenu par simplification de la géométrie du module de fibres creuses sera présenté et utilisé pour analyser l'effet de la compacité sur les performances de filtration. Cette simplification utilise le modèle de « cellule unitaire » décrit par Happel en 1959 développé initialement pour calculer la perméabilité d'un empilement régulier de fibres ou des modèles dérivés. Ce modèle considère un cylindre unique, entouré d'une couche enveloppe de fluide d'épaisseur limitée ; pour tenir compte de la présence des cylindres voisins. Ce travail fait l'objet d'une publication soumise au *Journal of Membrane science* en 2009. En complément de cette approche, un modèle tridimensionnel, rendant compte de façon plus réaliste de la géométrie du module et de l'écoulement, sera développé pour discuter de la validité des simplifications géométriques adoptées dans l'approche bidimensionnelle qui fait l'objet de la publication.

A numerical approach to study the impact of packing density on fluid flow distribution in hollow fiber module.

GÜNTHER Jan ^{1,2}, SCHMITZ Philippe ¹, ALBASI Claire ², LAFFORGUE Christine ¹,

¹Laboratoire d'ingénierie des Systèmes Biologiques et des Procédés, UMR INSA CNRS 5504, UMR INSA INRA 792, 135 avenue de Rangueil, 31077 Toulouse cedex 04, France

²Laboratoire de Génie Chimique, UMR CNRS 5503, 5 rue Paulin Talabot, BP 1301, 31106 Toulouse cedex 01, France

Abstract

The aim of this study was to analyze the influence of hollow fiber module design, specially packing density, and filtration operating mode on the filtration performance. In order to perform this analysis, a model based on the finite element method was used to simulate numerically the flow and filtration velocity along the fiber. An annular region of fluid surrounding the fiber was considered in order to account for the packing density Φ of the module. The originality of this approach lies in the study of fiber density effect on the hydrodynamic conditions, both for inside/out (IO) and outside/in (OI) filtration modes. The numerical simulations of fluid flow have shown a modification of the axial filtration velocity profile with packing density. When the density of fibers was high, filtration took place preferentially in the bottom of the fiber. In contrast, when the packing density was low, permeate flow was higher at the top of the fiber, i.e. the filtration module. Two experimental hollow fiber modules with two packing densities were tested and showed good agreement with the numerical data. These results underline the variations of filtration velocity along the fiber that will allow some predictions on fouling deposit to be done.

Keywords: filtration, Computational Fluid Dynamics, hollow fiber, packing density

NOMENCLATURE

E	External channel sub-domain
I	Internal channel sub-domain
M	Membrane or porous sub-domain
Perm.	Permeate side
Ret.	Retentate side
IO	Inside/out filtration mode
OI	Outside/in filtration mode
D	Thickness of the fluid envelope (m)
K	Intrinsic permeability (m ²)
L	Length of the fiber (m)
P	Pressure (bar)
P _p	Pressure of permeate side (bar)
P _r	Pressure of retentate side (bar)
R _{ext}	Fiber radius (m)
Re _w	Wall Reynolds number

Greek symbols:

ΔP_l	Local transmembrane pressure (bar)
ε	Porosity
μ	Dynamic fluid viscosity (Pa.s)
μ_{eff}	Effective dynamic fluid viscosity (Pa.s)
Φ	Packing density (%)

III.2 Introduction.

Hollow fiber membranes have become ubiquitous in many fields such as waste water treatment [1-3], biomedical engineering [4] and processing of beverages [5] because of their low manufacturing costs and simple handling. Moreover, one of the main advantages of this filtration configuration is the high membrane area per volume unit of module in comparison with other configurations of membranes. However, the major consequence of maximizing the membrane surface area per unit volume is an increase of the packing density of the hollow fibers. In submerged hollow fiber membrane processes, modules need voids among the fibers. These spaces not only become the path of up-flow but also facilitate mass transfer through fibers. Another consequence of high packing density could be increased fouling due to the unfavorable hydrodynamic conditions within the fiber bundles [6]. The filtration performance of a hollow fiber bundle depends on operating parameters such as the operating flux in constant flux mode or operating pressure in constant pressure mode as well as the packing density. Since high fiber density results in a poorer inter-fiber hydrodynamic environment [7, 8], optimization of fiber density may be relevant to improve the filtration performance of a submerged system.

Few authors have tried to evaluate the performance of individual fibers experimentally in a submerged hollow fiber bundle [9, 10]. The fibers located at different positions in the bundle behave differently as they are exposed to different hydrodynamic conditions. Yeo et al. [10] described an experimental model bundle of 9 fibers, which allowed the filtration flux of individual fibers to be measured. They found that the inner fibers (centre) performed very poorly compared to the external ones (corner and sides). Numerous two-dimensional models [6, 11-14] of varying degrees of complexity or simplification have appeared in the literature. They are intended to model the flow in membranes or thin channels with permeable walls. The interest of these analytical and semi-analytical models is the possibility of tailoring them for quick and easy investigations of the effects of different parameters on the performance of membrane systems. The development of a generic model with broad applicability to membrane systems requires rigorous, robust techniques.

Computational Fluid Dynamics (CFD) allows flow to be modeled in complex geometries. All the studies describe computational approaches to membrane filtration performance in a single fiber for one packing density. Recently, Marcos et al. [15] experimented with a transient model based on the finite element method to simulate the flow and the concentration in an ultrafiltration unit numerically. In their study, they modeled a 50-fiber cartridge by one fiber, assuming that all the fibers had the same behavior and that the flux was equal for them all. However, no specifications were given as to the spaces between two neighboring fibers or the value of the packing density.

Yoon et al. [6] described a practical method to optimize the design parameters of a vertically mounted submerged hollow fiber module. Their study dealt with the range of outer fiber diameters, the range of fiber lengths and the lumen: outer diameter ratio. A part of their study dealt with the effect of varying the outer and lumen diameters for a fixed fiber length. Assuming a regularly spaced arrangement of the fibers in the module, the authors distinguished some optimal parameters to increase filtration performance. However, reducing fiber diameter to increase packing density reduced the permeate flow rate per unit surface area. Furthermore, the membrane surface area was used less effectively at lower fiber diameters because the change in flux along the fiber length was then higher.

Chang et al. [7] studied the effect of fiber diameter on filtration and flux distribution experimentally for hollow fiber modules under air flow bubbling. A minor part of their investigation referred to fiber arrangement. Two kinds of arrangement were proposed: the fibers were fixed in a channel with controlled spacing, or were concentrated in the centre of the channel. These two arrangements were studied with 4 and 8 fibers and for two channel widths (24 and 8 mm). They showed an effect of increased fiber density on the decrease rate of flux decline. They linked this phenomenon with a decrease in bubble size and an unfavorable inter-fiber hydrodynamic environment.

The purpose of another study by the same authors [16] was to assess the effect of fiber orientation on the performance in the case of biomass filtration. The effect of fiber spacing on flux decline in the filtration of yeast suspension using 0.65 and 2.7 mm outer diameter fibers without bubbling was investigated. However, the smallest distance between fibers was 3 mm and did not represent the inter-fiber distances typically found in high-packing-density, hollow-fiber modules.

The originality of the present study is to focus on the impact of packing density on filtration performance in the case of a single-phase fluid without particles. The Navier Stokes and Darcy Brinkman equations are coupled and solved in a two-dimensional axisymmetric model to simulate fluid flow and the filtration velocity variations along a single fiber of the microfiltration module for different packing densities. This numerical approach is studied for two modes of filtration: inside/out and outside/in. The model is applied to simulate the flow for an experimental device described previously [17]. The simulation results are then compared to two experimental cases corresponding to two packing densities.

III.3 Material and methods.

III.3.1 Experimental device.

The numerical simulations were compared to some experimental results obtained with a device corresponding to a hollow fiber module immersed in a reactor filled with water. The transmembrane pressure was maintained with compressed air (Figure III-1). This system could be used both in inside/out (IO) or outside/in (OI) filtration mode, depending on the compression sense (Figure III-1). Water level in the reactor was maintained through a level regulation system that drove a feeding or draining pump. All experiments were performed at $T = 25^{\circ}\text{C}$.

Two bundles with different packing densities were specifically designed for this study (Polymem Toulouse, France). Their mean packing densities were $33 \pm 5 \%$ and $66 \pm 5 \%$. Fibers were U-shaped and were held together with epoxy-resin at their upper part. The upper part of the bundle was contained in a stainless steel punched receptacle and the filtering part immersed freely in the liquid. Fibers were made of polysulfone and had a nominal pore diameter of $0.1 \mu\text{m}$, while the internal and external diameters were 0.25 mm and 0.43 mm respectively.

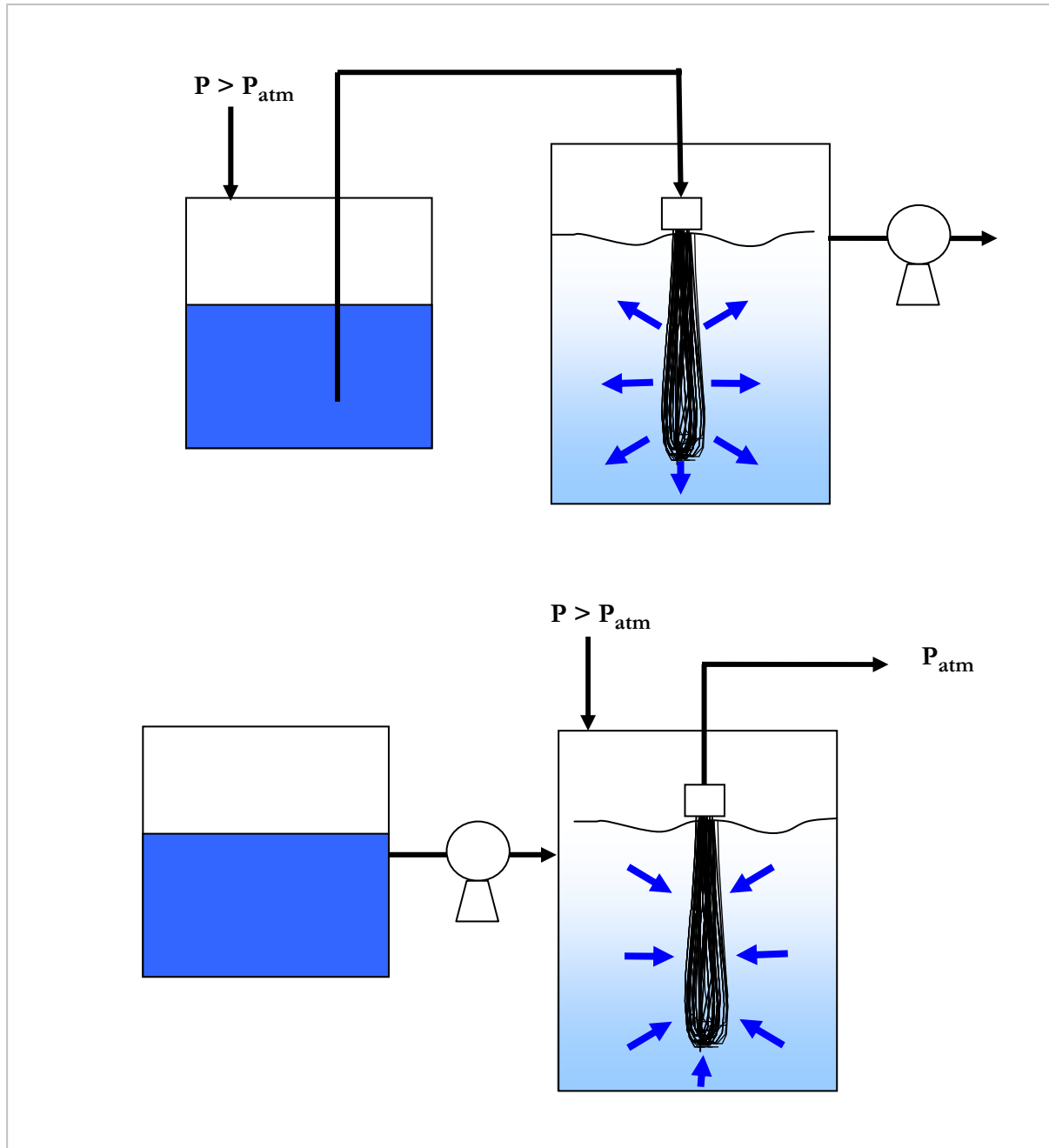


Figure III-1. Schematic design of the hollow fiber microfiltration module. (top): Inside/Out filtration mode IO; (bottom) : Outside/in filtration mode OI.

III.3.2 Definition of the model used for numerical simulations.

Studying a system composed of a large number of single elements, such as fibers in a filtration module, is quite difficult and remains a classic problem in chemical engineering. The determination of the properties of concentrated dispersions [18] or the computation of effective properties of a porous medium [19] are typical examples and a simplification of the geometry that has been the path followed by many researchers. To estimate the different microscopic characteristic parameters in a filtration module for different packing densities, the module first has to be divided into sub-cells. A few studies report shell side mass transfer performance of random arrangements of hollow fiber membranes [20, 21] and use Voronoi tessellation, which is a mathematical method to describe the subdivision of space between randomly packed objects by drawing straight boundaries equidistant between neighboring objects to form polygonal cells. However, when the Voronoi cells or the polygons are irregular, it is difficult to give the velocity profiles in the cell. In this paper, the hollow fiber bundle is modeled as an arrangement of perfectly regular cylinders and the fluid flow is calculated on the basis of a unit cell of this arrangement.

This principle comes from Happel's free surface model [22, 23], initially developed to calculate the permeability of a regular stacking of fibers or derived models. This model is based on the idea that two concentric cylinders can serve as the model for fluid flowing through an assemblage of cylinders. The inner cylinder consists of one of the fibers in the assemblage of radius, R_{ext} , and the outer cylinder is a fluid envelope with a free surface of radius $(R_{ext}+D)$ (Figure III-2). The relative volumes of fluid and solid in the cell model are taken to be the same as the relative volumes of fluid and solid in the assemblage of cylinders. More precisely, it is assumed that, at a distance from the disturbance to fluid motion caused by a cylinder, i.e. a fiber, the velocity of flow will not be greatly affected by the exact shape of the outside boundary.

The important consideration of this simplified approach is that the appropriate boundary condition of no slip along walls of the fluid envelope is maintained [22]. The situation is easily visualized in Figure III-3 (right) which shows the unit cell model assumed for axial flow. The fluid flows in the annular space between the cylinder of radius R_{ext} and the fluid envelope of thickness D . These boundary conditions give:

$$V_z = 0 \text{ at } r = R_{ext} \quad \text{Équation III-1}$$

$$\frac{dV_z}{dr} = 0 \text{ at } r = R_{ext} + D \quad \text{Équation III-2}$$

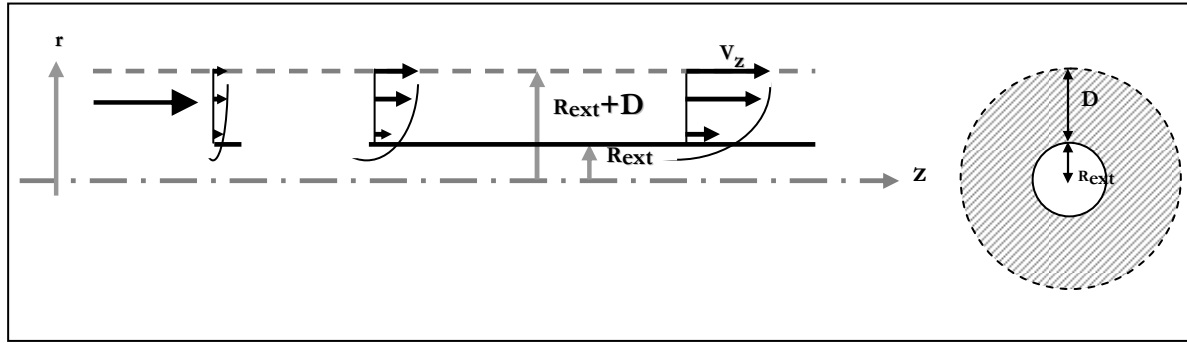


Figure III-2. Illustration of: (left) fluid flow through the annular space (flow is axisymmetric so only half of the tube is represented), (right) free surface model for axial flow.

III.3.2.1 Geometry of the system and computational mesh used.

The work presented here uses the commercially-available finite element code COMSOL multiphysics™ in order to solve the coupled physical problem of flow in channels and in a porous wall. The fluid is Newtonian. We consider a stationary, laminar and incompressible flow in the fluid channels (Figure III-3, sub-domains I and E) where the Navier Stokes equations reflecting the mass and momentum balances can be solved:

$$\nabla \cdot \vec{v} = 0 \quad \text{Équation III-3}$$

$$\rho(\vec{v} \cdot \nabla) \vec{v} = -\nabla P + \mu \nabla^2 \vec{v} \quad \text{Équation III-4}$$

where \vec{v} is the fluid velocity, P the pressure, and μ the dynamic viscosity. The Darcy-Brinkman model, an extended Darcy model reflecting the ability of flow to transmit a force through the viscous constraint in the case of high permeability, is used and the equations are solved for the numerical computation in the porous medium:

$$\mu_{eff} \Delta \vec{v} - \vec{\nabla} P - \frac{\mu}{K} \vec{v} = 0 \quad \text{Équation III-5}$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{v} = 0 \quad \text{Équation III-6}$$

where μ_{eff} is the effective dynamic viscosity, classically considered as μ/ϵ , ϵ representing the porosity of the porous sub-domain, and K is the intrinsic permeability of the porous sub-domain (Figure III-3, sub-domain M).

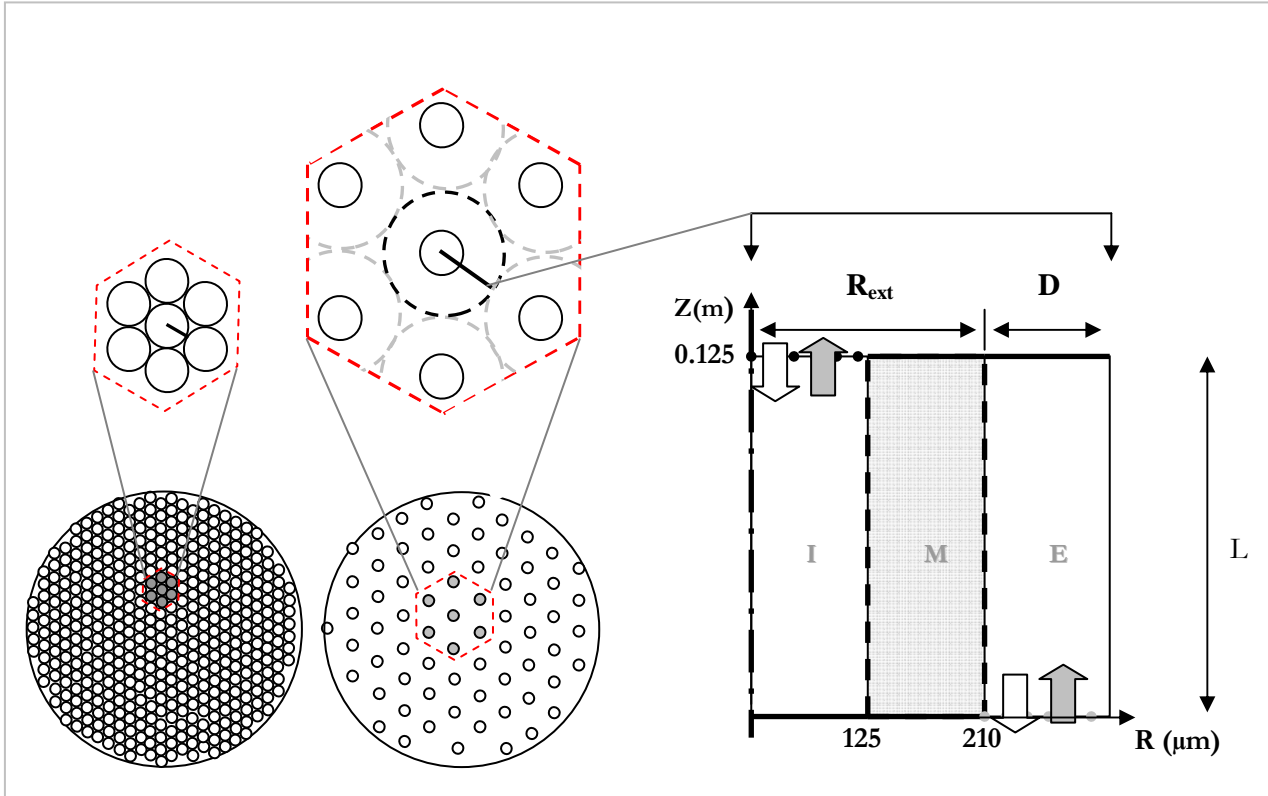


Figure III-3. Geometrical simplification of the hollow fiber bundle and scheme of the model with I: internal channel, M: membrane, E: external channel, R_{ext} : outer radius, D : distance between two fibres, L : length of the fibre.

In order to formulate the model, the flow is considered as a single phase and the fibers are immobile. A typical geometry of the hollow fiber module is shown in Figure III-4 : the module is assumed to be cylindrical; the cross-section is normal to the main flow in inner to outer filtration mode and is parallel in outside/in mode. A geometric domain is considered which consists of a single fiber surrounded by a fluid layer.

III.3.2.2 Evaluation of packing density.

Packing density can be defined as the ratio of total surface area of membrane to the cross-sectional area of the module [24]. According to this definition, for a fixed fiber length and lumen, packing density increases proportionally with fiber number. However, if more fibers are used in order to increase permeate productivity, the distance between two neighboring fibers should also be kept sufficient to minimize the confinement effect and to maintain the hydrodynamic conditions within the fiber bundles.

The fiber density is determined by considering the module as a regular arrangement of discs in a plane. Thus, by taking a hexagonal optimal stacking arrangement (Figure III-4), the basic mesh is a rhombus having the four neighboring discs as vertices. Its surface area is then:

$$S_l = 2R_{\text{ext}} \times (2R_{\text{ext}} \frac{\sqrt{3}}{2}) = 2\sqrt{3} \times R_{\text{ext}}^2 \quad \text{Équation III-7}$$

and contains the equivalent of a disc (R_{ext} is the outer radius of a fiber). The proportion of area covered, i.e. the fiber density can be written:

$$\Phi = \frac{\pi \cdot R_{\text{ext}}^2}{2\sqrt{3} \cdot (R_{\text{ext}} + D)^2} \quad \text{Équation III-8}$$

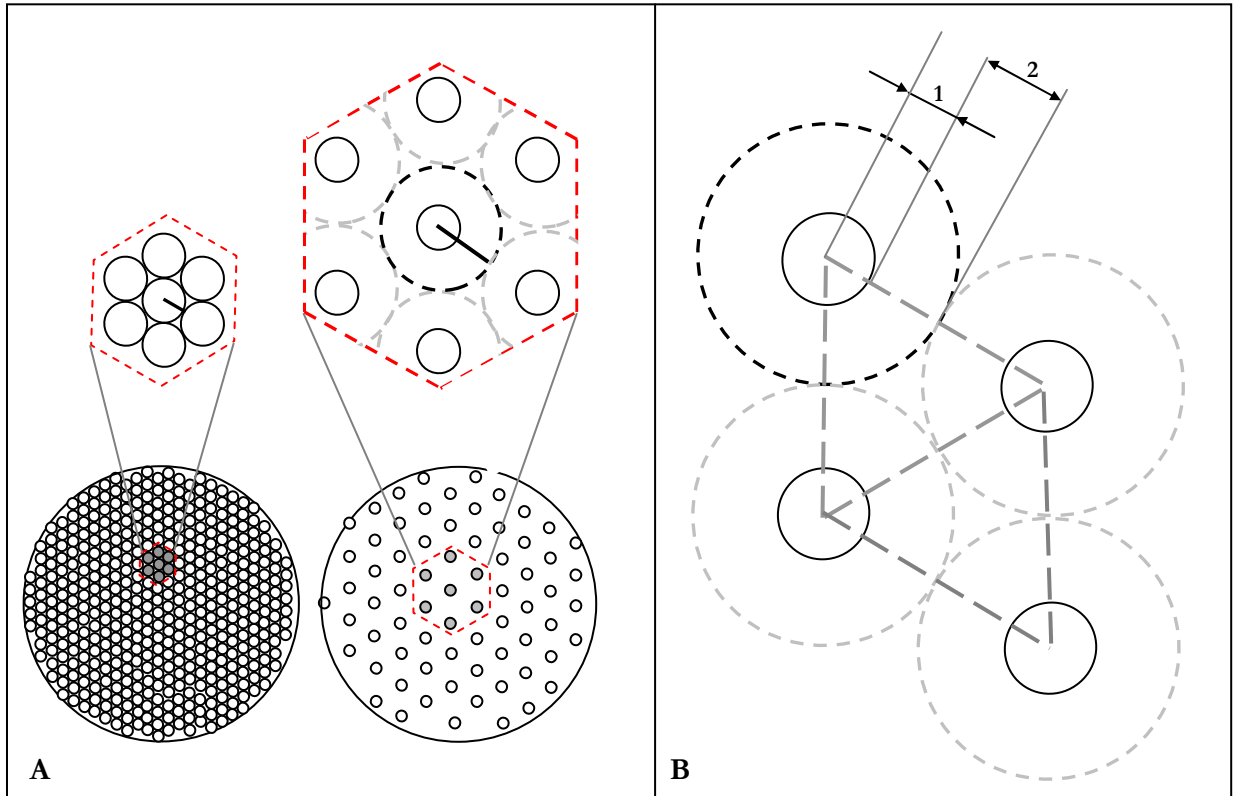


Figure III-4. (A) Schematic representation of high and low packing density in hexagonal stacking; (B) Basic mesh used in the study (Rhombus) with $R_{\text{ext}} \Rightarrow 1$ and $D \Rightarrow 2$, vertices are the four neighboring discs.

III.3.2.3 Parameters for numerical application and selection of boundary conditions.

Parameters

For the numerical application, the parameter values corresponded to those of the experimental device and different external channel width values were considered in order to represent the variable packing density. (Tableau III-1)

Tableau III-1. Summary of parameters values used for numerical model

<i>Hollow fiber:</i>
- internal radius $R_{int} = 125. 10^{-6} \text{ m}$
- external radius $R_{ext} = 210. 10^{-6} \text{ m}$
- length $L = 0.125 \text{ m}$
<i>Porous wall:</i>
- permeability $K_m = 1.7. 10^{-16} \text{ m}^2$
- thickness $e_m = 85 \text{ }\mu\text{m}$
<i>External channel thickness:</i>
- $D = 25. 10^{-6} \text{ m}$ for $\Phi = 0.8$
- $D = 50. 10^{-6} \text{ m}$ for $\Phi = 0.6$
- $D = 100. 10^{-6} \text{ m}$ for $\Phi = 0.4$
<i>Transmembrane pressure $\Delta P = 0.8 \text{ bar}$</i>

Typically, meshes with 100 cells along the fiber, 20 cells across the inner channel, and 10 cells across the porous medium were used. For the external annular channel, 5 cells, 10 cells and 20 cells were used for $D = 25 \text{ }\mu\text{m}$, $D = 50 \text{ }\mu\text{m}$ and $D = 100 \text{ }\mu\text{m}$ respectively. Moreover, a non-uniform mesh distribution was used for the internal and external channel, with the cell density being higher at the membrane interface. Special care was taken to avoid excessively high cell stretch rates. In all three cases, we checked that the filtration velocity profile along the fiber and flow rate for the external channel were independent of the mesh used. When a mesh one fifth of the original size was used, the difference was less than 0.2 % for the filtration velocity and 0.04 % for the flow rate.

Boundary conditions:

At the inlet, a uniform pressure condition of 0.8 bar with perpendicular flow was set. This pressure was set accordingly to transmembrane pressure used in our experimental device.

- inside/out filtration mode (IO): for $z = 0.125$ m, $P = 0.8$ bar
- outside/in filtration mode (OI): for $z = 0$ m, $P = 0.8$ bar.

Other inlet pressure or flow conditions could be specified for different applications with appropriate modification of the inlet channel width if required. At the outlet (gray small dotted line for inside/out filtration mode and black small dotted line for outside/in filtration mode in Figure III-3), the pressure was set to zero.

- IO: for $z = 0$ m, $P=0$
- OI: for $z = 0.125$ m, $P=0$

Axisymmetric, for $r=0$, $V_r = 0$ (and vanishing stresses in z direction), and symmetric boundaries are set in dotted and thin solid black lines respectively (Figure III-3).

At both the non-porous and porous walls (solid black), the *no-slip* condition was imposed. It is true that the boundary condition at the fluid/porous medium interface is still an open question for specialists. Beavers and Joseph [25] proposed a slip condition at the interface for the coupling between a Navier Stokes model for fluid flow in the channels and a Darcy Brinkman model in the porous medium (porous wall). On the microscopic scale, the surface of the porous medium consists of solid wall, on which fluid sticks, and pores, on which fluid slips. Therefore, even though the Darcy Brinkman model considers a homogeneous surface, the physical behavior of the fluid has to be taken into account using a slip condition. However, it has been found in a previous paper [26] that the slip velocity at the interface can be neglected as long as the permeability of the porous medium is low, i.e. the aspect ratio between the pore diameter and the height of the channel is small. As this is the case for a hollow fiber, it can be assumed that there is no slip velocity at the fluid/porous medium interface. Thus, it remains the continuity of the normal velocity and the pressure at the interface. They are represented in large black dotted line (Figure III-3).

III.4 Results and discussion.

With the geometrical model presented previously, numerical results were obtained for different module configurations corresponding to three values of the packing density.

For inside/out filtration mode, the profile of the axial velocity in the unit cell for three sections ($z = 6.4 \cdot 10^{-3}$, 0.056 and 0.12 m) are given in Figure III-5 for the lumen and in Figure III-6 for the external channel. For outside/in filtration mode, Figure III-7 and Figure III-8 show the axial velocity profile of the external channel and the lumen, respectively, for the three sections described above. As can be seen, all the velocity profiles are parabolic. This is similar to the classical velocity profile obtained for a fully developed laminar flow in a channel without wall suction or injection. A number of authors have already studied fluid flow in various channels with wall suction or injection [27, 28]. Similar solutions of fully developed laminar flows have been developed for low [29, 30] and high [31, 32] wall suction and injection. The critical parameter is Re_w , the wall Reynolds number or the filtration Reynolds number based on filtration velocity and channel half height $Re_w = \rho v_r R / \mu$ with ρ the fluid density, v_r the filtration velocity, R the radius of the fiber and μ the fluid dynamic viscosity. Even if the corresponding velocity profiles differ theoretically from the parabolic profile, it is generally shown that the velocity profile can be approximated by a parabolic profile as long as Re_w is much lower than 1. It should be noted that this is the case in the present study as Re_w is always about 0.01. Thus the numerical results obtained confirm previous theoretical investigations.

Several observations can also be made. Considering IO mode and a fixed packing density, as can be expected, while retentate flows from the inlet to the bottom of the fiber, the flow velocity increases in the inner channel and in the external channel (permeate side). While permeate flows towards the exit, additional permeate is added to the flow and the flow velocity increases in the external channel. Consequently, the rate of pressure drop should increase along the fiber. Considering increasing packing density, with space restriction in the external channel, the flow velocity decreases in the internal channel and increases on the permeate side. Considering OI filtration mode, the space restriction acts in the opposite way in the external channel; i.e. it enhances the increase of flow velocity with the packing density. Consequently the rate of decrease in pressure drop should be greater for a high packing density than for a weak packing density.

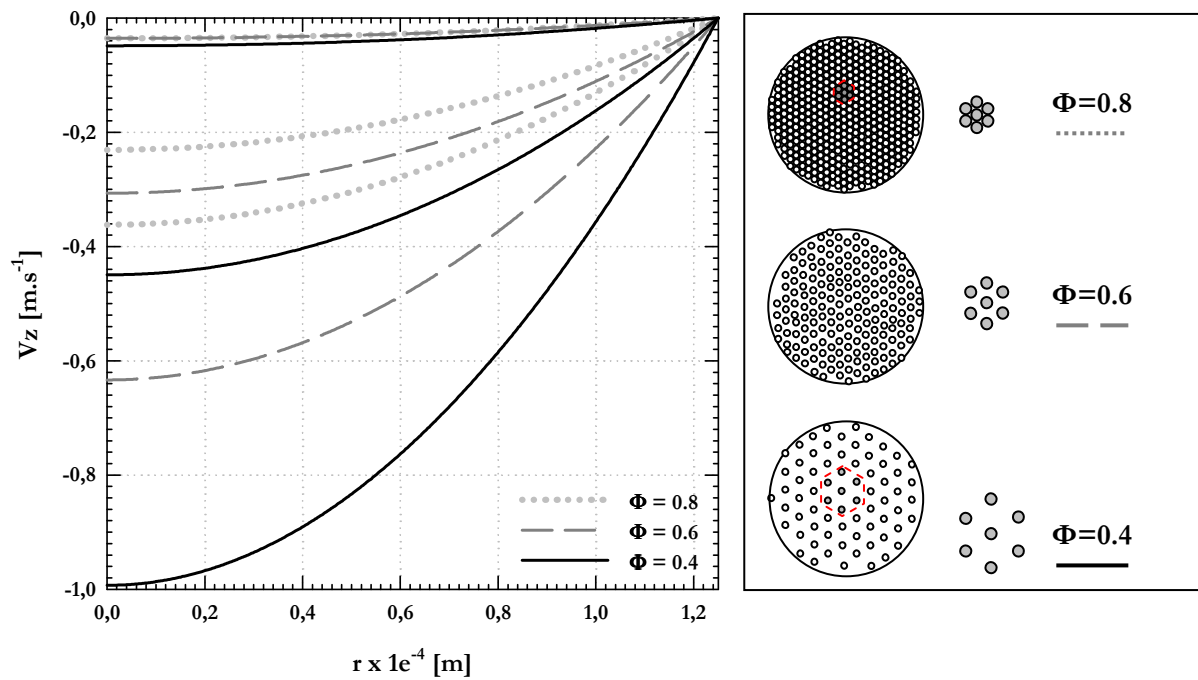


Figure III-5. Velocity profiles in the lumen versus width at $z = 6.4 \cdot 10^{-3}$, 0.056 and 0.12 m, in the inner to outer filtration mode.

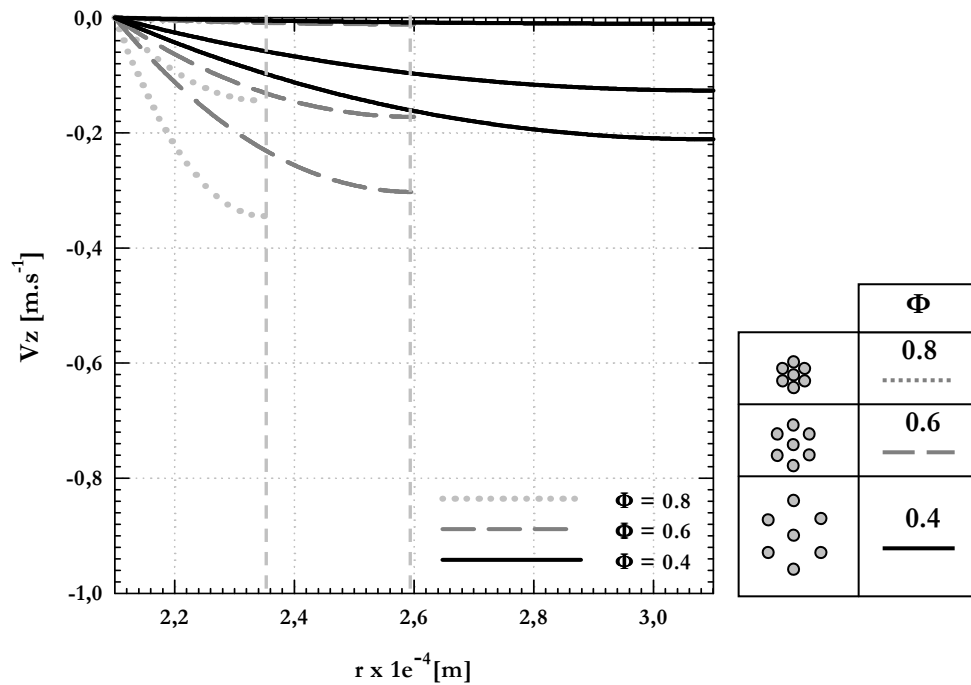


Figure III-6. Velocity profiles in the external channel versus width at $z = 6.4 \cdot 10^{-3}$, 0.056 and 0.12 m, in the inner to outer filtration mode (dotted lines are the geometrical axis of symmetry of each model).

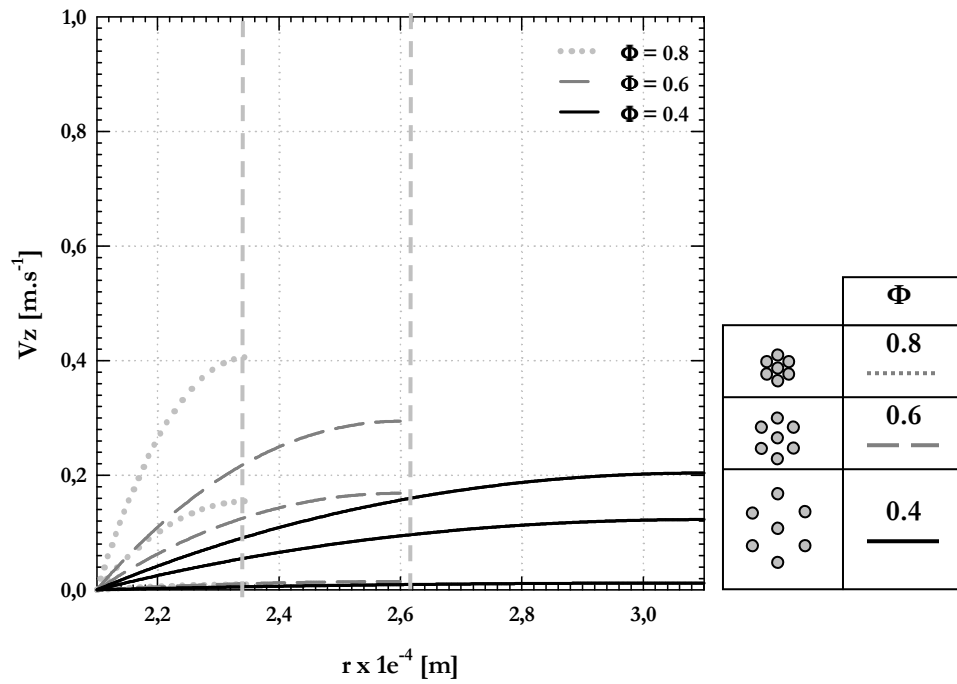


Figure III-7. Velocity profiles in the annulus versus width at $z=6.4 \cdot 10^{-3}$, 0.056 and 0.12 m, in the outside/in filtration mode (dotted lines are the geometrical axis of symmetry of each model).

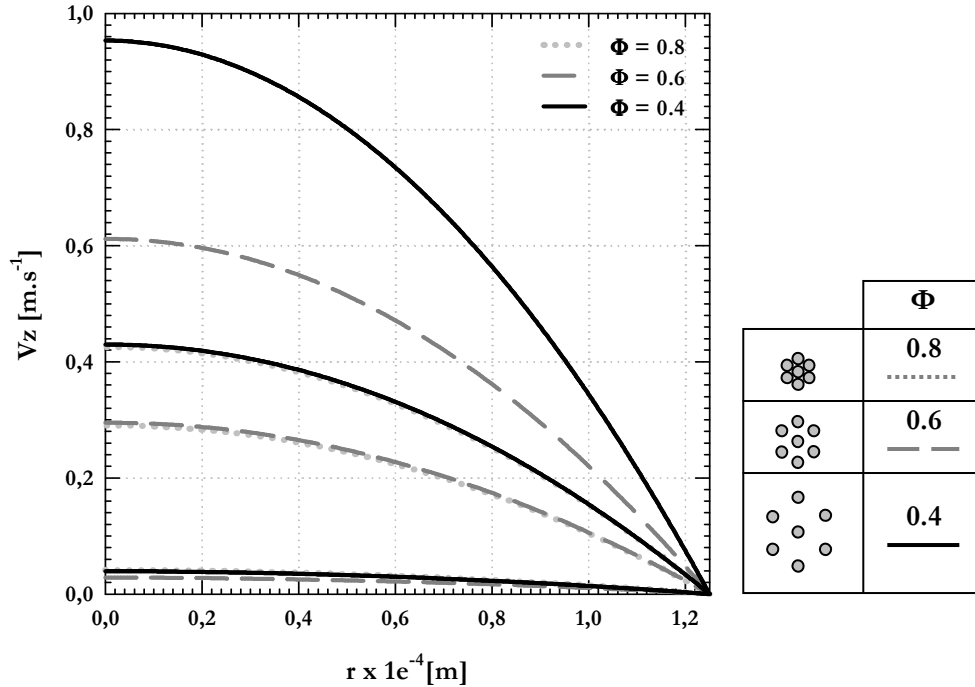


Figure III-8 Velocity profiles in the internal channel versus width at $z = 6.4 \cdot 10^{-3}$, 0.056 and 0.12 m, in the outer to inner filtration mode (dotted lines are the geometrical axis of symmetry of each model).

In order to assess the significance of the pressure variation along the fiber in both the internal and the external channel, the pressure P is shown in Figure III-9 and Figure III-10 for three values of the packing density. For IO filtration mode, considering packing densities of $\Phi = 0.8$ (high), $\Phi = 0.6$ and $\Phi = 0.4$ (low), the pressure drops in the retentate side (Ret.) reach 0.04, 0.09 and 1.5 bar respectively. Considering the permeate side, for $\Phi = 0.8$, 0.6 and 0.4, the pressure drops reach 0.56, 0.13 and 0.01 bar respectively. Introducing the local transmembrane pressure ΔP_l , which is the difference between the pressures at the retentate and permeate sides for a fixed z coordinate ($\Delta P_l = P_R - P_P$) (taking into account manometric pressure variation), this term is 70 % lower at the top than at the bottom of the fiber for $\Phi = 0.8$. Lower values of Φ lead to a decrease in this difference between the top and bottom of the fiber.

Considering OI filtration mode, for $\Phi = 0.8$, 0.6, 0.4, the pressure drops in the retentate side at the top of the fiber are 0.04, 1.5 and 0.63 bar respectively. Values for the permeate side reach 0.1, 0.12 and 0.17 bar at the bottom of the fiber for packing densities of 0.8, 0.6 and 0.4 respectively. The local transmembrane pressure difference between the top and the bottom of the fiber reaches 80 % for high packing density. The variation of pressure along the fiber is dictated by the confinement of the system. As the diameter decreases with increasing packing densities, the variation of local transmembrane pressure drop becomes greater.

At the membrane surface, the filtration velocity along the fiber length for the different packing densities is represented in Figure III-11 and Figure III-12. These variations are the direct consequence of variations of pressure along the fiber at both the retentate and permeate sides, which are proportional to the local transmembrane pressure. Considering inner to outer filtration mode and $\Phi = 0.8$ ($5 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$), filtration velocity at the entrance of the fiber is 72 % lower than at the outlet. Filtration velocity is almost uniform along the fiber length for $\Phi = 0.6$. Considering a weak packing density $\Phi = 0.4$, the inside/out filtration mode leads to a higher filtration velocity at the top (entrance) of the fiber. The outside/in filtration mode shows the opposite filtration velocity profile, i.e. a higher filtration velocity at the bottom (entrance) than at the top of the fiber, and presents higher filtration velocity. For $\Phi = 0.8$, 0.6, 0.4, the differences between filtration velocity values found at the entrance and at the bottom of the fiber reach values of 28, 12.5 and 18 % respectively. Thus, an increase of the filtration velocity is mainly due to an increase in local transmembrane pressure from the entrance to exit. This phenomenon could significantly reduce membrane performance, i.e. performance levels predicted using models assuming uniform filtration velocity.

To sum up, in inner to outer filtration mode, the space restriction in the annulus due to the increase in packing density leads to a higher pressure at the top of the external channel than at the bottom, generating a high gradient of local transmembrane pressure along the fiber. Filtration takes

place preferentially in the region where the transmembrane pressure is highest, i.e. at the bottom of the fiber. As the distance between two neighboring fibers grows, the profile of local transmembrane pressure drop becomes uniform and filtration occurs uniformly all along the fiber length. Exactly the same phenomenon occurs in the outside/in filtration mode. A higher transmembrane pressure at the bottom of the fiber will lead to a higher filtration flux, generating a non-uniform filtration flux profile.

Figure III-13 shows the evolution of filtration flux with packing density. This representation clearly illustrates the dramatic effect on filtration performance of increasing the packing density. The packing density induces longitudinal variation of filtration velocity along the fiber length. For high density of fiber, preferential filtration velocity is found on the bottom of the fiber in inside/out and in outside/in filtration mode.

This last point provides a very interesting way of investigating the polarization layer or fouling in the case of filtration of a particle suspension [33]. With the assumption that particles follow the streamlines, spatial variation of thickness could be observed all along the fiber length and this last point will be presented in our forthcoming studies. Moreover, there are a few prospects for studying the impact of packing density on growth and longitudinal distribution of the fouling cake.

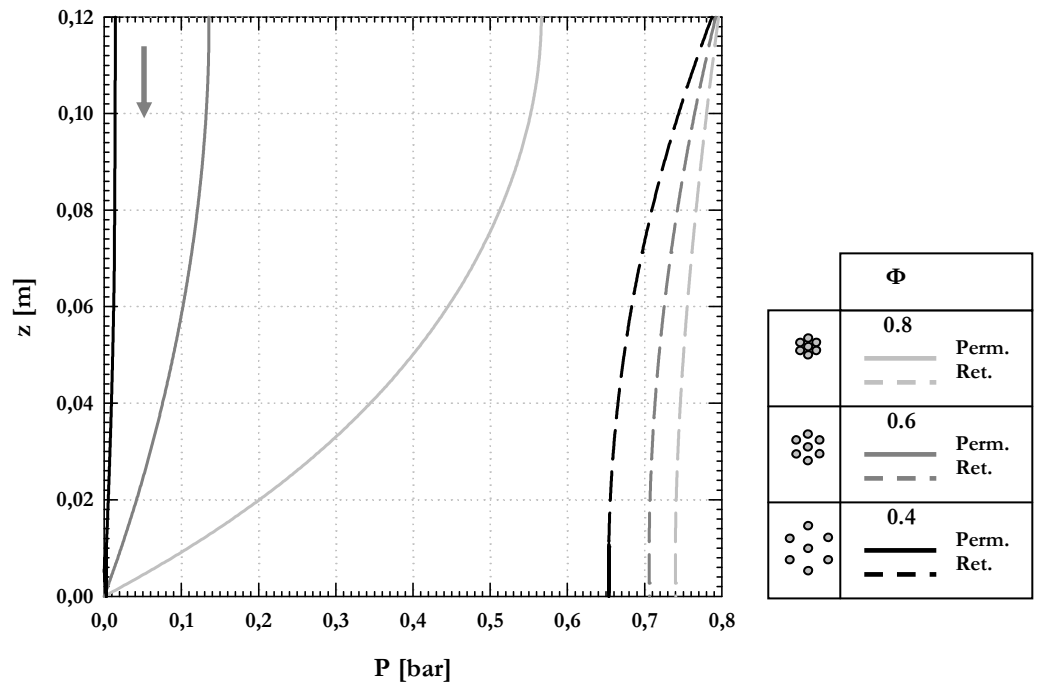


Figure III-9. Variation of pressure along the fiber at the permeate side (Permeate side, solid line), and at the retentate side (Retentat side, dashed line) for inner to outer filtration mode.

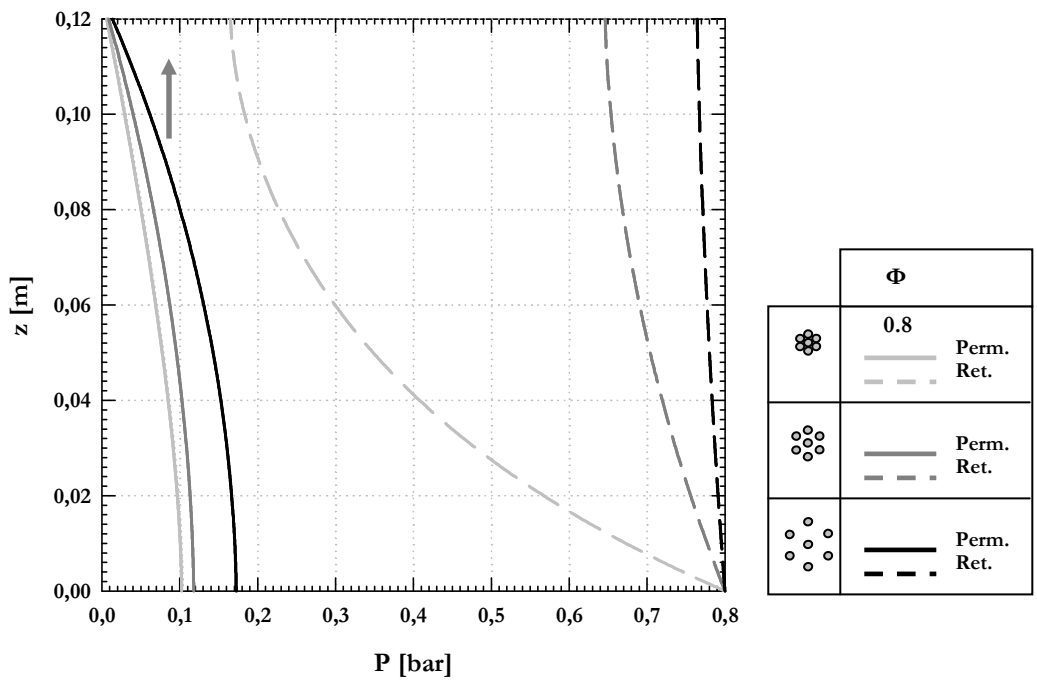


Figure III-10. Variation of pressure along the fiber at the permeate side (Permeate side, solid line), and at the retentate side (Retentate, dashed line) for outer to inner filtration mode.

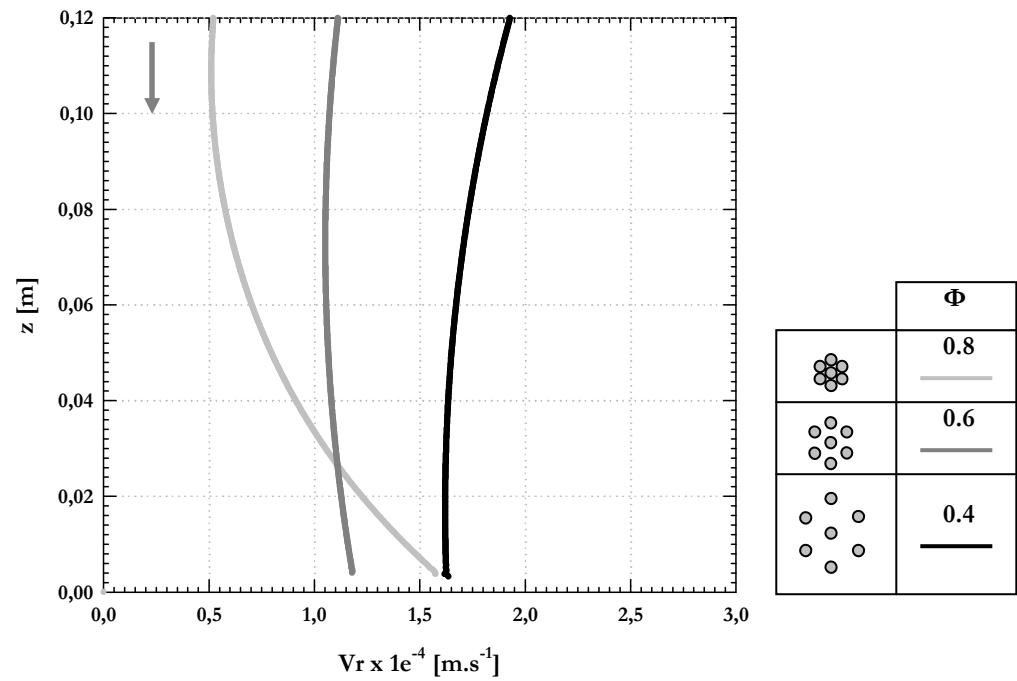


Figure III-11. Filtration velocity along the fiber in inner to outer filtration mode.

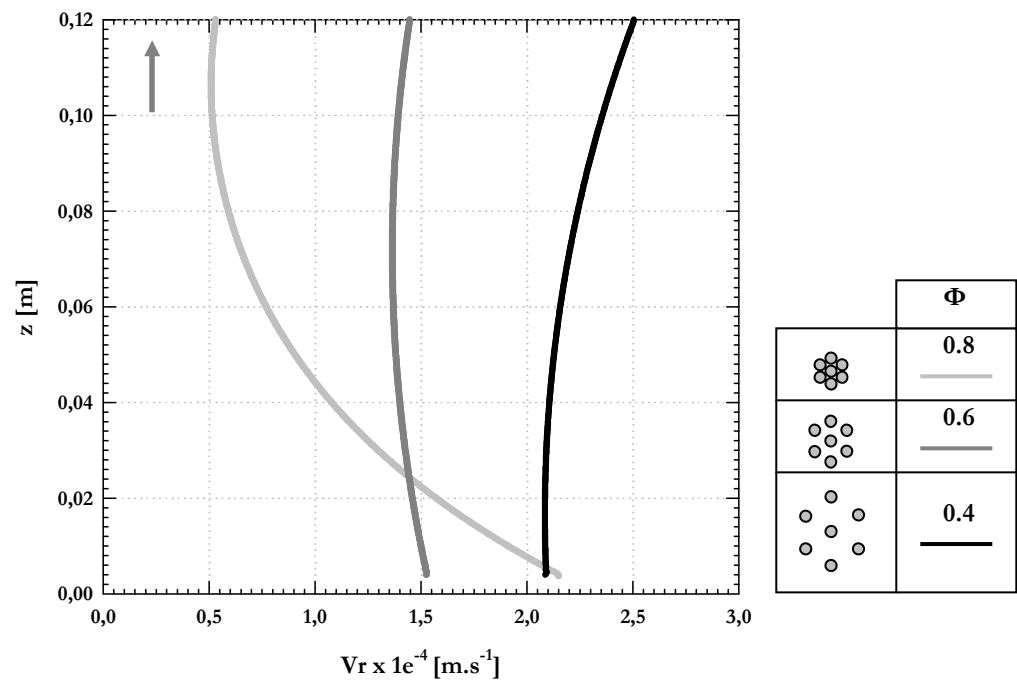


Figure III-12. Filtration velocity along the fiber in outer to inner filtration mode.

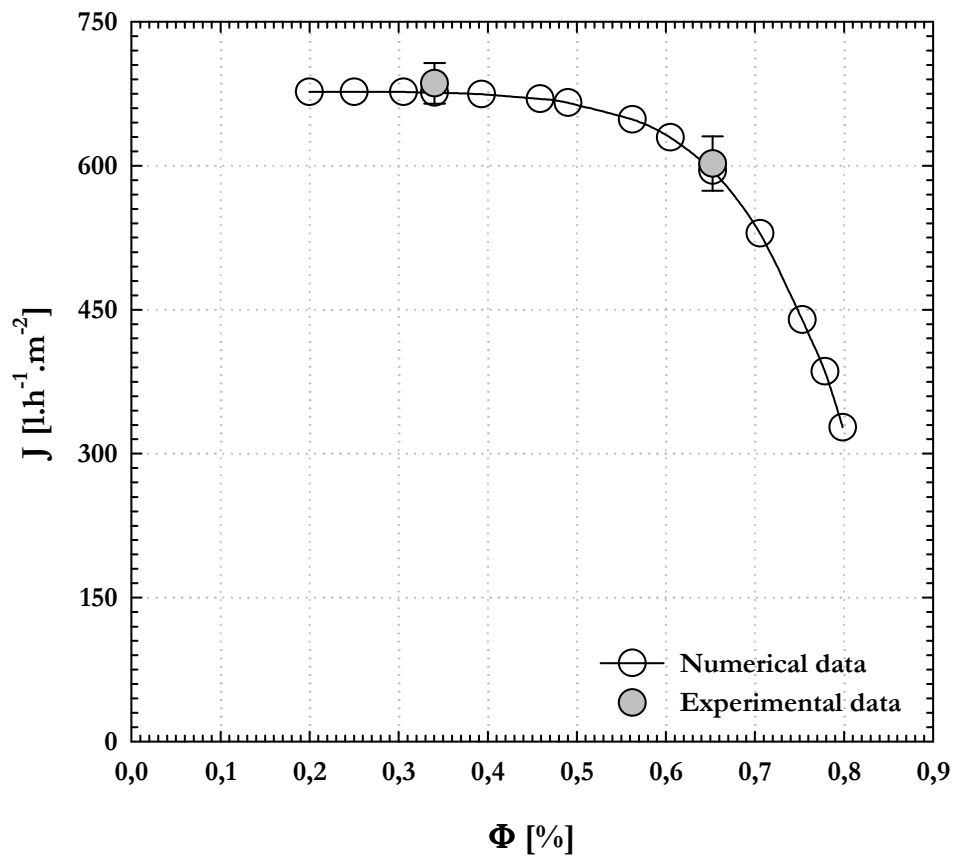


Figure III-13. Evolution of filtration flux with packing density.

III.5 Conclusion.

The CFD based model developed in this study demonstrates its entire handling to study the impact of geometrical parameters of a hollow fiber module on filtration performance levels. The results underline the major effect of packing densities on filtration velocity and, particularly, on the spatial distribution of permeate velocity along the whole fiber length. Although the effect of particle capture and eventual movement of the fiber bundle in the module are neglected in this work, the model was able to predict that: i) increasing packing density would lead to a non-uniform permeate profile along the fiber length; ii) at very high packing density, filtration flux would decrease dramatically and iii) filtration would occur preferentially at the bottom of the fiber. While the CFD model developed contains a fixed lumen radius, the geometry can be easily modified to encompass any fiber lumen and fiber external radii found in the literature. Some investigations of the spatial deposition of deposit cake have been undertaken, and will be presented in a forthcoming study.

References:

1. Yeo, A.P.S., Law, A.W.K., and Fane, A.G., *Factors affecting the performance of a submerged hollow fiber bundle*. Journal of Membrane Science, 2006. **280**(1-2): p. 969.
2. Albasi, C., Bessiere, Y., Desclaux, S., Remigny, J.C., *Filtration of biological sludge by immersed hollow-fiber membranes: influence of initial permeability choice of*. Desalination, 2002. **146**(1): p. 427.
3. Busch, J., Cruse, A., and Marquardt, W., *Modeling submerged hollow-fiber membrane filtration for wastewater treatment*. Journal of Membrane Science, 2007. **288**(1-2): p. 94.
4. De Bartolo, L., Drioli, E., Morelli, S., *Human hepatocyte functions in a crossed hollow fiber membrane bioreactor*. Biomaterials, 2009. **30**(13): p. 2531.
5. Girard, B. and Fukumoto, L.R., *Membrane Processing of Fruit Juices and Beverages: A Review*. Critical Reviews in Food Science and Nutrition, 2000. **40**: p. 91.
6. Yoon, S.-H., Kim, H.-S., and Yeom, I.-T., *Optimization model of submerged hollow fiber membrane modules*. Journal of Membrane Science, 2004. **234**(1-2): p. 147.
7. Chang, S. and Fane, A.G., *The effect of fibre diameter on filtration and flux distribution -- relevance to submerged hollow fibre modules*. Journal of Membrane Science, 2001. **184**(2): p. 221.
8. Zheng, J., Xu, Y., and Xu, Z., *Flow distribution in a randomly packed hollow fiber membrane module*. Journal of Membrane Science, 2003. **211**(2): p. 263.
9. Chang, S., Fane, A.G., Waite, T.D., Yeo, A., *Unstable filtration behavior with submerged hollow fiber membranes*. Journal of Membrane Science, 2008. **308**(1-2): p. 107.
10. Yeo, A. and Fane, A.G., *Performance of individual fibers in a submerged hollow fiber bundle*. Water Science & Technology, 2005. **51**(6-7): p. 165-172.
11. Karode, S.K., *Laminar flow in channels with porous walls, revisited*. Journal of Membrane Science, 2001. **191**(1-2): p. 237.
12. Gill, W.N., Wiley D.E., Fell, C.J.D., Fane, A.G., et al., *Effect of viscosity on concentration polarization in ultrafiltration*. AIChE Journal, 1988. **34**(9): p. 1563-1567.
13. Yoon, S.-H., Lee, S., and Yeom, I.-T., *Experimental verification of pressure drop models in hollow fiber membrane*. Journal of Membrane Science, 2008. **310**(1-2): p. 7.
14. Nassehi, V., *Modelling of combined Navier-Stokes and Darcy flows in crossflow membrane filtration*. Chemical Engineering Science, 1998. **53**(6): p. 1253.
15. Marcos, B., Moresoli, C., Skorepova, J., Vaughan, B., *CFD Modeling Of A Transient Hollow Fiber Ultrafiltration System For Protein Concentration*. Journal of Membrane Science. **In Press, Accepted Manuscript**.
16. Chang, S., Fane, A.G., and Vigneswaran, S., *Experimental assessment of filtration of biomass with transverse and axial fibres*. Chemical Engineering Journal, 2002. **87**(1): p. 121.
17. Günther, J., Albasi, C., and Lafforgue, C., *Filtration characteristics of hollow fiber microfiltration membranes used in a specific double membrane bioreactor*. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 2009.
18. Tadros, T.F., *Use of viscoelastic measurements in studying interactions in concentrated dispersions*. Langmuir, 1990. **6**(1): p. 28-35.
19. Nétinger, B., *The effective permeability of a heterogeneous porous medium*. Transport in Porous Media, 1994. **15**(2): p. 99.
20. Wang, Y., Fei, C., Wang, Y., Luo, G., Dai, Y., *Effect of random packing on shell-side flow and mass transfer in hollow fiber module described by normal distribution function*. Journal of Membrane Science, 2003. **216**(1-2): p. 81.

21. Rogers, J.D. and Long, R.L., *Modeling hollow fiber membrane contactors using film theory, Voronoi tessellations, and facilitation factors for systems with interface reactions*. Journal of Membrane Science, 1997. **134**(1): p. 1.
22. Happel, J., *Viscous flow relative to arrays of cylinders*. AIChE Journal, 1959. **5**(2): p. 174-177.
23. Happel, J. and Brenner, H., *Low Reynolds number hydrodynamics*. 1983. Medium: X; Size: Pages: 553.
24. Chang, S., Fane, A.G., and Vigneswaran, S., *Modeling and optimizing submerged hollow fiber membrane modules*. AIChE Journal, 2002. **48**(10): p. 2203-2212.
25. Beavers, G.S. and Joseph, D.D., *Boundary conditions at a naturally permeable wall*. Journal of Fluid Mechanics Digital Archive, 1967. **30**(01): p. 197-207.
26. Schmitz Ph., Prat, M., *3-D Laminar stationary flow over a porous surface with suction: Description at pore level*. AIChE Journal, 1995. **41**(10): p. 2212-2226.
27. G. Chatterjee, S. and Belfort, G., *Fluid flow in an idealized spiral wound membrane module*. Journal of Membrane Science, 1986. **28**(2): p. 191.
28. Oxarango, L., Schmitz, Ph., and Quintard, M., *Laminar flow in channels with wall suction or injection: a new model to study multi-channel filtration systems*. Chemical Engineering Science, 2004. **59**(5): p. 1039.
29. Berman, A.S., *Laminar Flow in Channels with Porous Walls*. Journal of Applied Physics, 1953. **24**(9): p. 1232.
30. Yuan, S.W. and Finkelstein, A.B., *Laminar pipe flow with injection and suction through a porous wall*. Transaction of ASME, 1955. **78**: p. 719-724.
31. Terril, R.M., *Laminar flow in a uniformly porous channel*. Aeronaut, 1964(15): p. 297.
32. Terril, R.M., *Laminar flow in a porous tube*. Journal of Fluids Engineering, 1983. **105**: p. 303-307.
33. Damak, K., Ayadi A., Zeghmami, B., Schmitz, Ph., *Concentration polarisation in tubular membranes --a numerical approach*. Desalination, 2005. **171**(2): p. 139.

Résumé :

Le travail précédemment décrit avait pour but d'évaluer par simulation numérique l'impact de la densité de fibres sur les performances de filtration, et ceci dans le cas d'un fluide simple sans particules.

Parmi les différentes approches qui peuvent être utilisées pour modéliser l'écoulement dans un faisceau de fibres creuses, l'approche microscopique est la plus employée et a été retenue pour cette étude. Le faisceau de fibres est alors modélisé comme un arrangement de cylindres parfaitement régulier, et l'écoulement est calculé sur un élément de base ou « cellule unitaire » de cet arrangement. Cette approche simplifiée bidimensionnelle, a permis de caractériser l'effet d'un certain nombre de paramètres (espacement des fibres, vitesses de filtration axiale), qu'ils soient de nature physique ou géométrique, sur les performances de filtration.

Les simulations réalisées par cette approche ont ainsi mis en évidence de grandes variations des vitesses de filtration le long de la fibre et ceci en lien direct avec une augmentation de la perte de charge dans le canal externe due au confinement des fibres.

En complément, une étude en trois dimensions pour 2 compacités différentes a été entreprise afin d'évaluer la validité de cette simplification dans le cas de fibres creuses.

III.6 Simulation en trois dimensions de l'écoulement dans les modules de fibres creuses.

III.6.1 Description du problème, hypothèses et méthodes.

Dans cette partie, on se propose d'étudier le caractère tridimensionnel de l'écoulement dans le module de fibres creuses. Le but ici est d'évaluer sans simplification, l'impact du confinement des fibres, et donc de la compacité du module, sur les performances de filtration du module en supposant un arrangement régulier de fibres. Le code de calcul COMSOL Multiphysics est utilisé pour résoudre les équations couplées de Navier Stokes et Darcy Brinkman, respectivement dans les parties fluides et poreuses du modèle en trois dimensions. Les simulations ont été réalisées à l'échelle de la fibre afin d'étudier la forme des champs de vitesse et de pression locaux pour le régime d'écoulement correspondant au fonctionnement du dispositif. (PTM = 0,8bar)

La simulation numérique de l'écoulement a été réalisée sur l'élément unitaire représentatif, ou motif répétitif, décrit dans l'article précédent. La fibre, de rayon extérieur 210 μm est constituée d'un canal interne de rayon 125 μm et donc d'un milieu poreux d'épaisseur 85 μm qu'on suppose homogène, l'ensemble ayant une hauteur de 125 mm. L'écoulement est considéré stationnaire, laminaire et incompressible dans les canaux fluides où l'équation de Navier Stokes traduisant le transfert de quantité de mouvement est résolue :

$$\nabla \cdot \vec{v} = 0 \quad \text{Équation III-9}$$

$$\rho(\vec{v} \cdot \nabla) \vec{v} = -\nabla P + \mu \nabla^2 \vec{v} \quad \text{Équation III-10}$$

où \vec{v} est la vitesse du liquide, P sa pression et μ sa viscosité dynamique.

Le modèle de Darcy-Brinkman, extension du modèle de Darcy traduisant la capacité de l'écoulement à transmettre une force par le biais de la contrainte visqueuse dans le cas de très fortes perméabilités, est utilisé et ses équations sont résolues par le calcul numérique dans le milieu poreux :

$$\mu_{eff} \Delta \vec{v} - \vec{\nabla} P - \frac{\mu}{K} \vec{v} = 0 \quad \text{Équation III-11}$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{v} = 0$$

Équation III-12

où \vec{v} est la vitesse du liquide, P la pression, μ_{eff} représente la viscosité effective (choisie comme μ/ϵ , ϵ étant la porosité du sous-domaine poreux) et K la perméabilité intrinsèque du milieu poreux.

III.6.2 Description géométrique.

La Figure III-14 représente une coupe transversale de quatre fibres creuses disposées en arrangement hexagonal compact. Cet arrangement, comme dans le travail précédent, a été choisi car il représente un empilement optimal compact de cercles dans un plan.

On peut distinguer plusieurs axes de symétrie en considérant les lignes passant par le centre de chaque cercle et donc isoler un motif triangulaire répétitif dans cet arrangement.

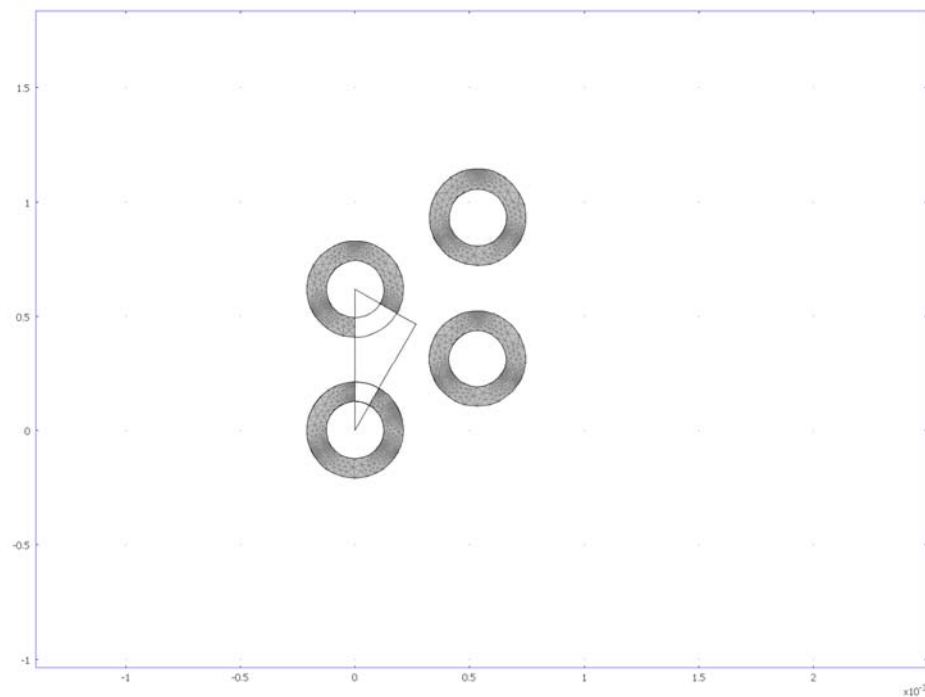


Figure III-14. Représentation schématique 2D de l'arrangement hexagonal compact de quatre fibres creuses en coupe transversale.

Les conditions aux limites sont les même que celles énoncées en III.3.2.3 :

- En entrée, une condition de pression de 0,8 bar (pression utilisée dans l'approche expérimentale) avec un écoulement perpendiculaire est fixée ($z = 0,125$ m, $p = 0,8$ bar). Il

faut noter que ce choix est associé à notre expérience mais que d'autres conditions de pression ou d'écoulement peuvent être spécifiées pour différentes applications avec également une modification du canal d'entrée.

- En sortie, la condition de pression est fixée égale à 0 ($z = 0$ m, $p=p_0$).

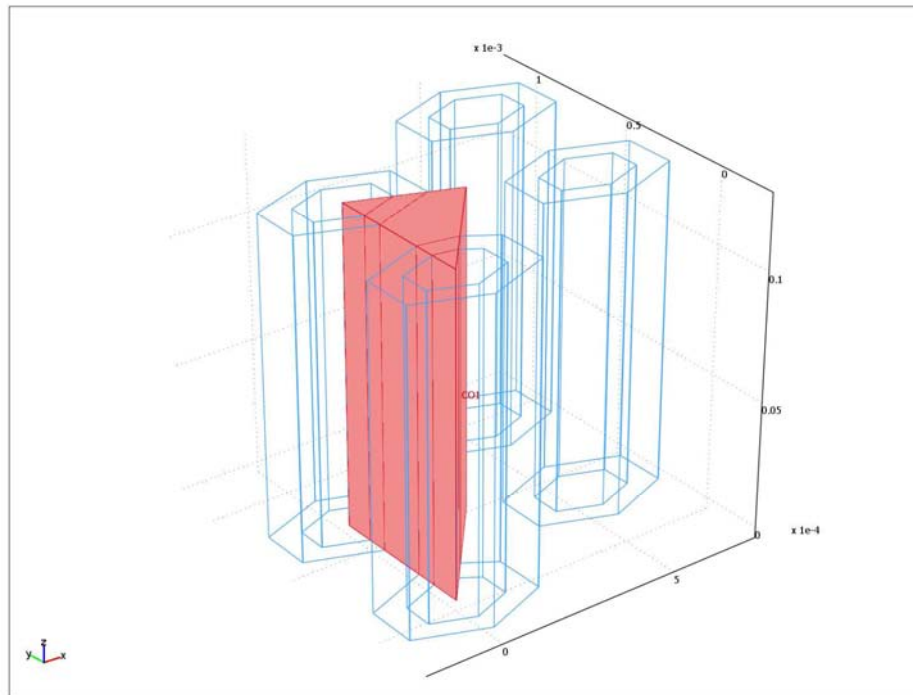


Figure III-15. Représentation 3D de l'arrangement hexagonal compact de quatre fibres creuses et matérialisation de l'espace de simulation.

Sur les parois, une condition de non glissement est imposée ; Schmitz et Prat [26] ayant montré que l'effet de glissement était négligeable à la surface d'une membrane présentant une faible perméabilité. Ainsi, les composantes axiales des vitesses aux parois perméables sont considérées comme égales à zéro et les conditions de continuité des vitesses et de la pression sont définies (pour $r= 0.125 \cdot 10^{-6}$ m $v_z=0$). Finalement, les conditions d'axisymétrie ($r=0$, $u_r = 0$) et de symétrie sont définies.

NB : Il est à noter que la Figure III-15 représente des fibres hexagonales. Ceci n'est qu'une vue simplifiée du logiciel. La simulation s'effectue tout de même sur une portion de fibre circulaire (Cf annexe 4).

III.6.3 Résultats et discussion.

III.6.3.1 Mode de filtration Interne/Externe : influence de la compacité.

Dans un premier temps, nous avons voulu vérifier l'effet de la compacité sur l'écoulement à l'intérieur, et entre les fibres creuses. La Figure III-16 représente les champs de pression et les lignes de courant pour une compacité de $\Phi=0,8$ et une compacité de $\Phi=0,4$ en mode de filtration interne/externe. L'échelle de pression est représentée sur la partie droite de la figure et a pour valeur minimal 0 bar et valeur maximal 0,8 bar.

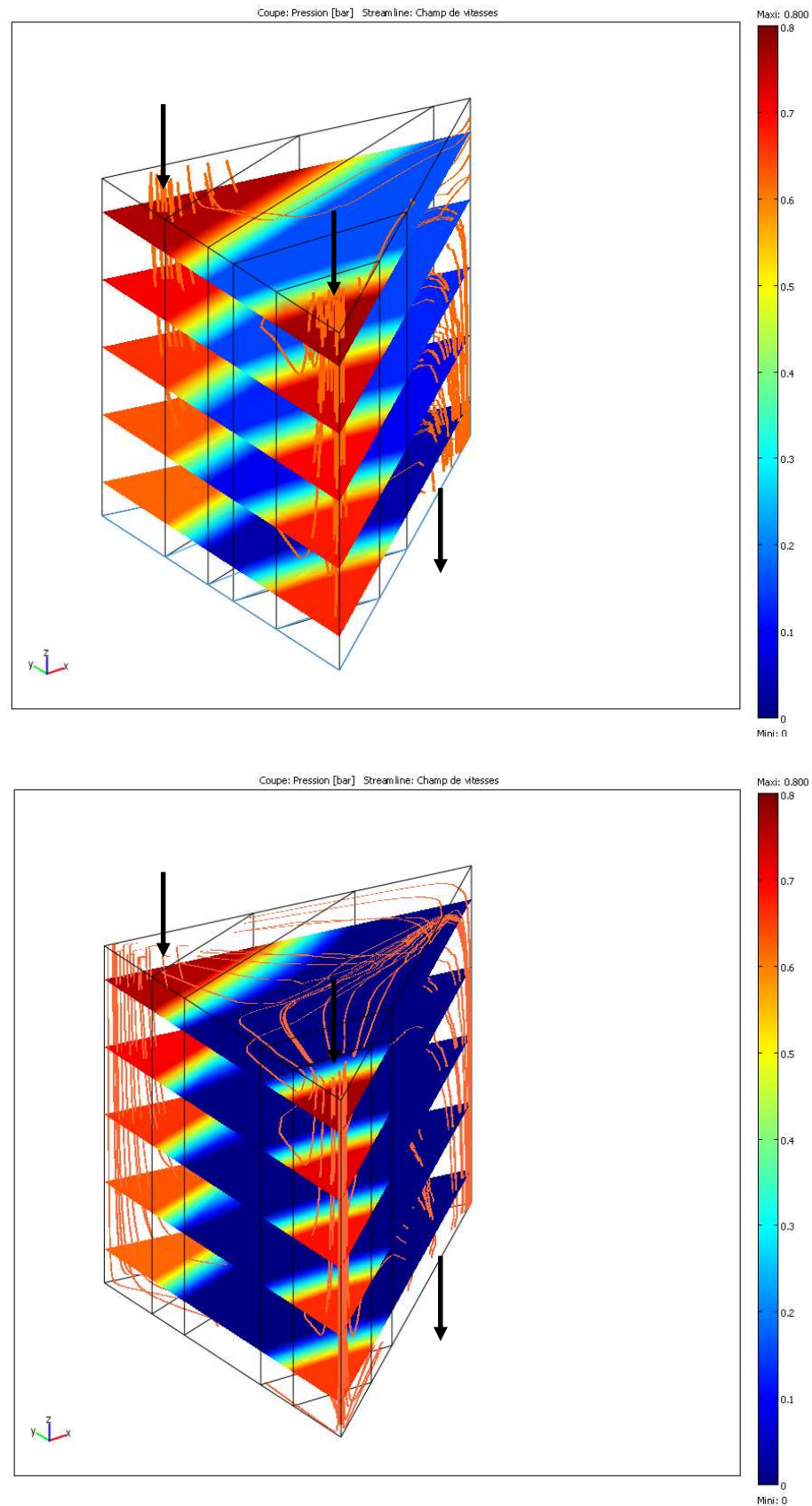


Figure III-16. Représentation des champs de pression (coupe) et des champs de vitesses (ligne de courant) d'écoulement du fluide en mode de filtration interne/externe pour $\Phi=0,8$ (haut) et $\Phi=0,4$ (bas).

Dans un premier temps, concernant l'arrangement le plus lâche $\Phi=0,4$, une chute de pression à l'intérieur des fibres côté retentât est observée allant de 0,8 bar à 0,63 bar sur la frontière 18 (face interne de la fibre) et allant de 0,8 bar à 0,66 bar sur la frontière 14 (face externe de la fibre) (Figure III-17). Cette chute de pression correspond à la perte de charge due à l'écoulement du fluide dans la fibre. La pression à l'extérieure des fibres est homogène et proche de zéro.

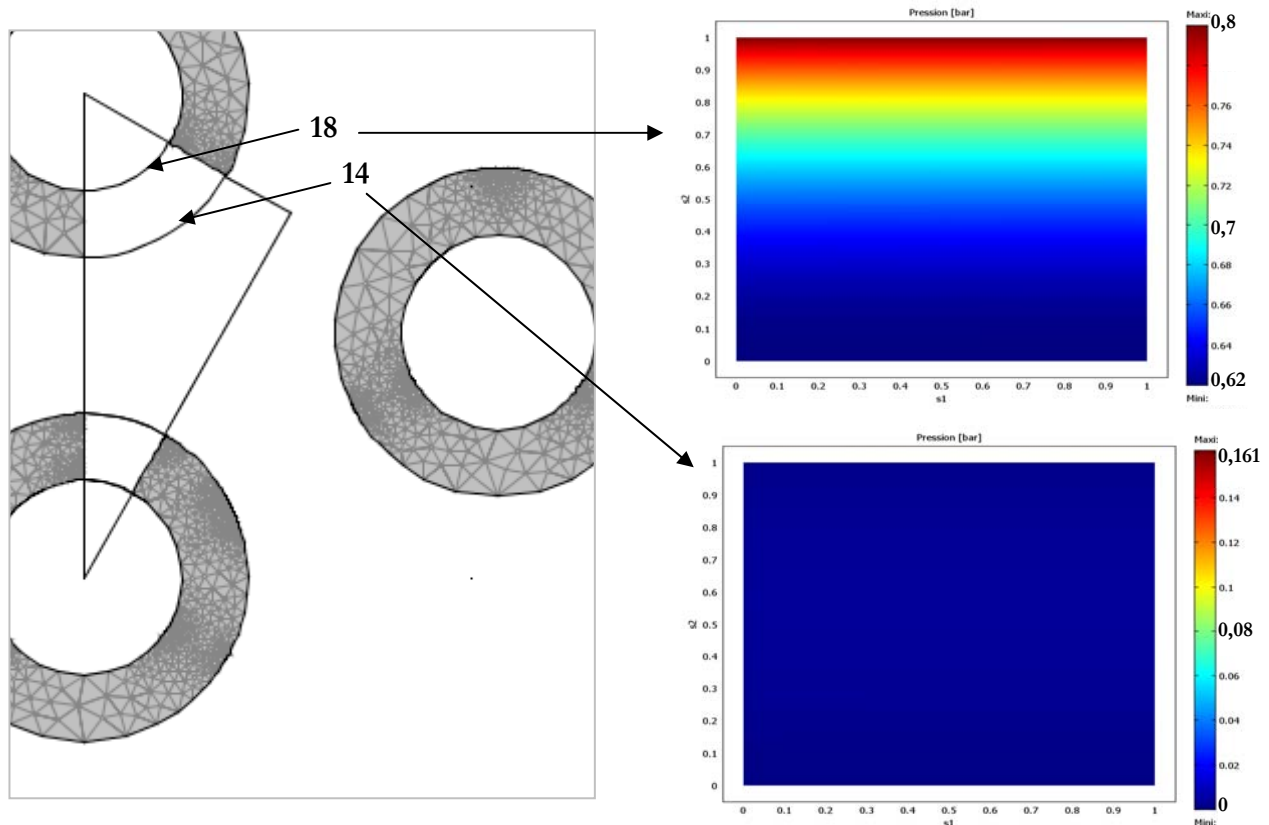


Figure III-17. Répartition de la pression sur la frontière 18 (intérieur de la fibre) et sur la frontière 14 (extérieur de la fibre) pour $\Phi=0,4$.

Si l'on s'intéresse maintenant à l'arrangement le plus compact présentant une compacité de $\Phi=0,8$ et représenté sur la Figure III-18, la perte de charge à l'intérieur de la fibre (frontière 18) est sensiblement égale à celle obtenue pour la compacité la plus lâche. Néanmoins, le rapprochement des fibres dû à l'augmentation de la compacité induit une augmentation de la pression du fluide à l'extérieure des fibres (frontière 14). Cette pression est de l'ordre de 0,161 bar en haut de la fibre et décroît faiblement sur la première moitié jusqu'à une valeur de 0,115 bar, pour décroître plus fortement sur la deuxième moitié jusqu'à la valeur de la pression de sortie imposé = 0 bar.

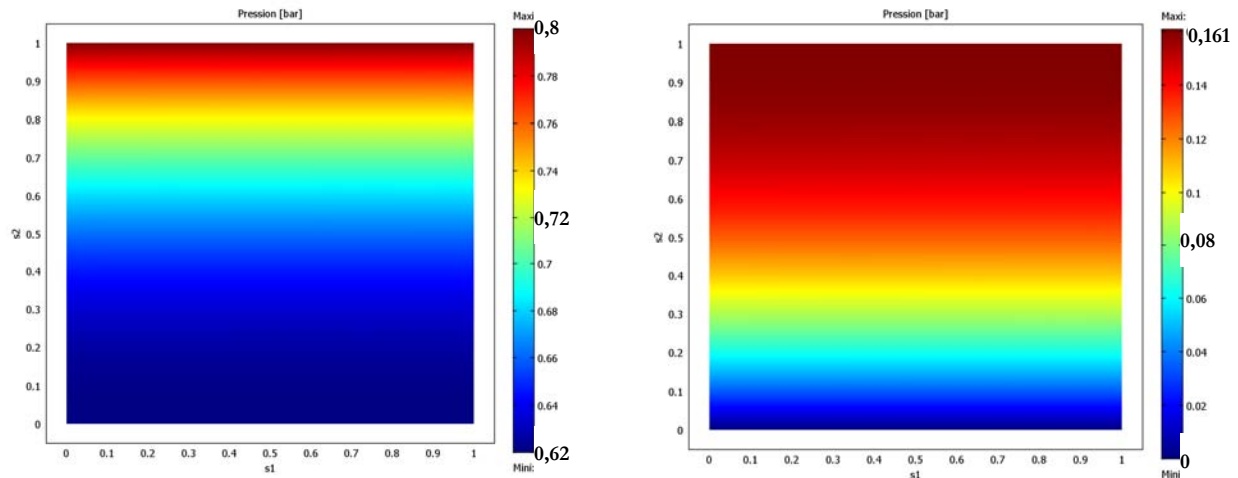


Figure III-18. Répartition de la pression sur la frontière 18 (intérieur de la fibre) et sur la frontière 14 (extérieur de la fibre) pour $\Phi=0,8$.

Comme nous l'avons décrit dans la Figure III-9, cette variation de pression est directement liée à une variation de vitesse de filtration le long de la fibre. Si l'on considère les lignes de courant représentant l'écoulement du fluide sur la Figure III-16, pour la faible compacité (bas), le fluide s'écoule préférentiellement en haut de la fibre. Pour la compacité plus élevée, les lignes de courant semblent être plus réparties vers le bas de la fibre.

III.6.3.2 Mode de filtration Externe/Interne.

La Figure III-20 représente les champs de pression et les lignes de courant du fluide pour une compacité de 0,8 (haut) et une compacité de 0,4 (bas) en mode de filtration Externe/Interne. Concernant la compacité la plus faible, la variation de pression à l'extérieur des fibres est très faible et la pression reste proche de 0,8 bar (0,78 bar, Figure III-19 droite). Un gradient de perte de charge du à l'écoulement du fluide à l'intérieur de la fibre se crée. La pression à l'intérieur de la fibre variant de 0,161 bar (bas de la fibre) à 0 bar. La différence de pression transmembranaire étant plus importante sur le haut de la fibre, la filtration se fera préférentiellement à ce niveau. Cette conclusion est à comparer avec la Figure III-12, présentant la vitesse de filtration dans l'approche 2D montrant également pour cette compacité, une filtration préférentielle en haut de la fibre en mode de filtration externe/interne.

Lorsque les fibres se rapprochent, les observations et les conclusions sont symétriques au mode interne/Externe : Il y a création d'un gradient décroissant de pression à l'extérieur des fibres du bas vers le haut (Cf Figure III-19 gauche). Le gradient de perte de charge interne est similaire à celui

obtenu pour la compacité plus lâche. Il se crée donc un gradient de PTM local qui augmente du bas vers le haut de la fibre, encourageant la filtration dans le même sens. La filtration aura lieu préférentiellement en bas de la fibre pour une forte compacité en mode Externe/Interne.

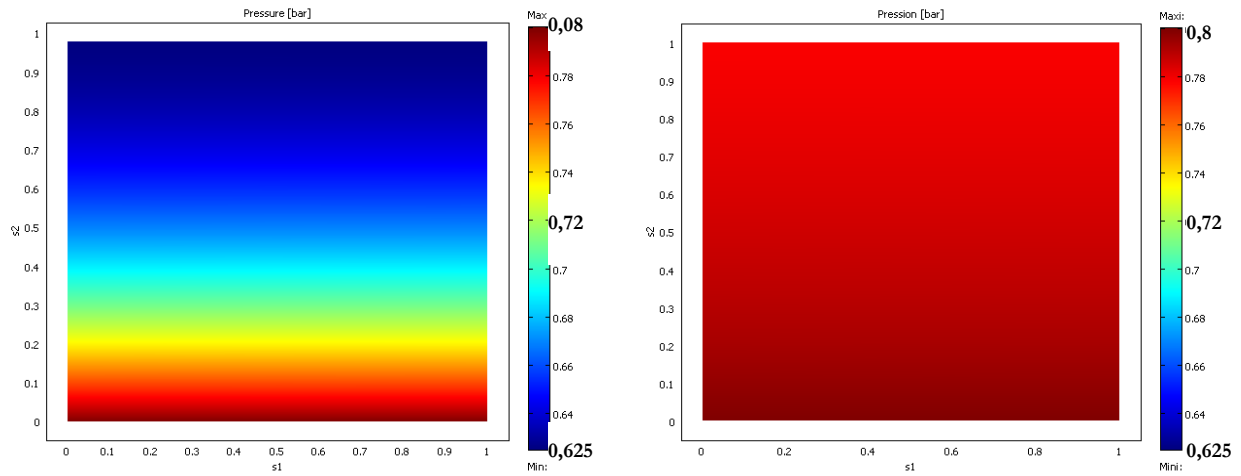


Figure III-19. Répartition de la pression sur la frontière 14 pour $\Phi=0,8$ (gauche) et $\Phi=0,4$ (droite).

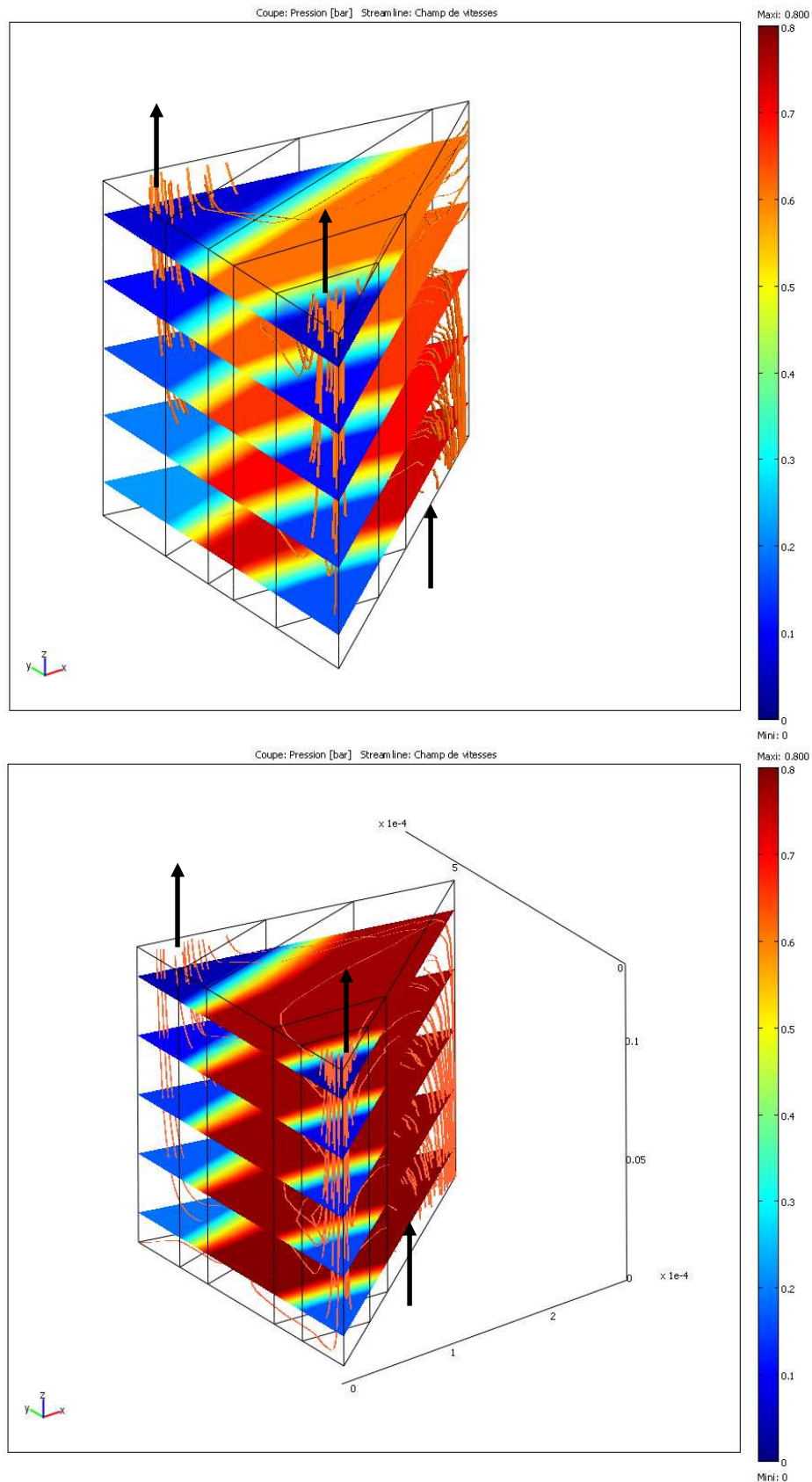


Figure III-20. Représentation des champs de pression (coupe) et des champs de vitesses d'écoulement du fluide (ligne de courant) en mode de filtration Externe/Interne pour $\Phi=0,8$ (haut) et $\Phi=0,4$ (bas).

III.6.3.3 Conclusion et discussion.

L'objectif de cette approche en trois dimensions était d'évaluer les performances de filtration d'un module de fibres creuses en fonction de la densité de fibres ou compacité, afin de prédire des zones de filtration préférentielle au sein du module.

Cette étude a ainsi montré que la répartition de la pression transmembranaire locale le long de la fibre est dépendante de la compacité et, par conséquent, de la proximité des fibres entre elles. Une forte compacité entraînera une filtration plutôt sur le bas du module de filtration quel que soit le mode de filtration alors qu'une faible compacité favorisera une filtration sur la partie haute.

En ce qui concerne la méthodologie de simulation, l'approche à 3 dimensions permet de s'affranchir du modèle de Happel et de sa simplification géométrique. Si l'on compare les débits de filtration d'une fibre en fonction de la compacité obtenus par les deux approches 2D et 3D, représentés sur la Figure III-21, certaines observations peuvent être faites. Les deux stratégies conduisent à des valeurs proches si l'on considère une faible compacité, en revanche, plus la compacité augmente, plus la différence est importante.

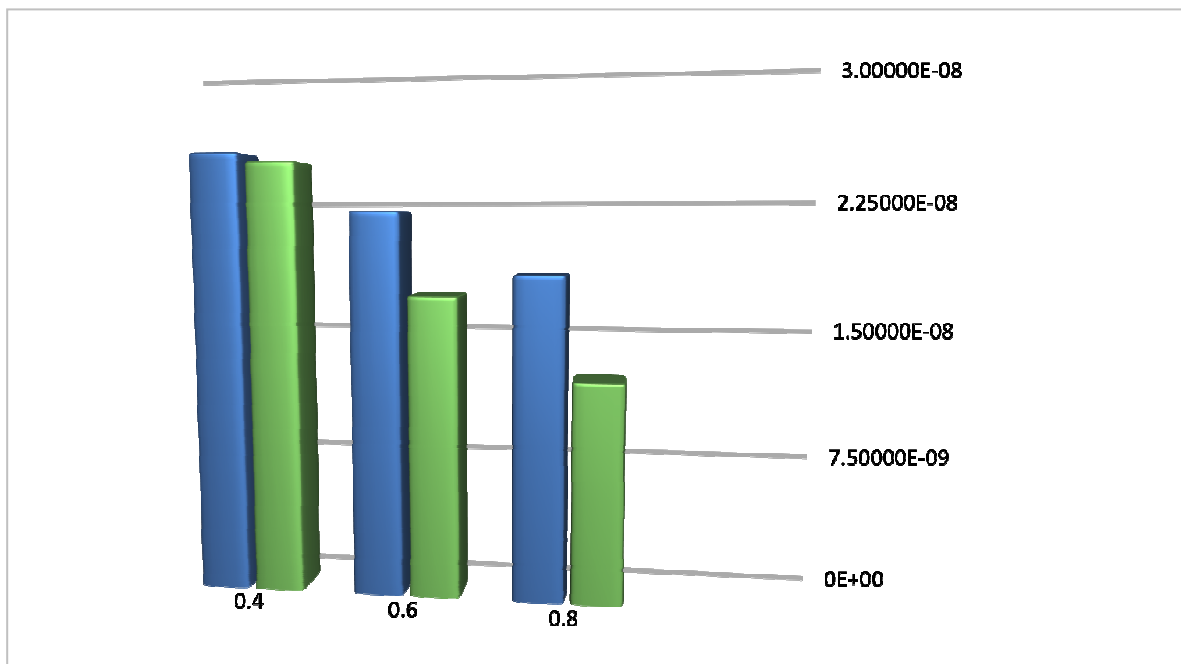


Figure III-21. Débit de filtration d'une fibre pour l'approche 2D (vert) et l'approche 3D (bleu) en fonction de la compacité.

Pour tenter d'expliquer cela, quelques observations et explications peuvent être faites quand aux vitesses de filtration axiale. La Figure III-23 représente l'évolution de la vitesse de filtration axiale sur la frontière 18 (Figure III-17) en mode Externe/Interne (haut) et Interne/Externe (bas) en

fonction de la longueur de la fibre (axe des ordonnées) pour $\Phi=0,8$. Parallèlement, la Figure III-24 représente l'évolution de la vitesse de filtration axiale sur frontière 18 (Cf. Figure III-17) en mode Externe/Interne (haut) et Interne/Externe (bas) en fonction de la longueur de la fibre (axe des ordonnées) pour $\Phi=0,4$. Deux observations peuvent être faites, la première concernant les vitesses de filtration, et la seconde la répartition de ces vitesses. En effet, que l'on compare les modes Externe/Interne ou Interne/Externe pour les deux compacités, les vitesses de filtration sont plus élevées en Interne/Externe, cette différence s'amplifiant lorsque la compacité diminue. Ceci peut être un élément à prendre en considération pour expliquer des différences obtenues, expérimentalement entre les flux à l'eau Interne/Externe et Externe/Interne. Cependant, l'aspect le plus intéressant de la comparaison réside dans la répartition des vitesses de filtration en fonction de l'angle Θ (abscisses sur les Figure III-23 et Figure III-24). En effet, les Figure III-23 et Figure III-24 décrivent de plus fortes vitesses plutôt vers le centre des figures, ce qui correspond à une zone dans laquelle la distance entre deux fibres est la plus grande Figure III-22. (L'aspect de ces figures réside dans un maillage encore non optimisé faute de puissance de calcul, Cf annexe 4).

Il semble donc que la simplification induise l'apparition d'un biais surestimant l'effet de la compacité sur le débit de filtration. L'écoulement apparaît plus contraint en 2D, avec plus de frottement. Néanmoins, cette approche tridimensionnelle nécessiterait des approfondissements et un réglage des paramètres du modèle (amélioration du maillage et simplification géométrique permettant un allègement du temps de calcul tout en augmentant le nombre de mailles etc.).

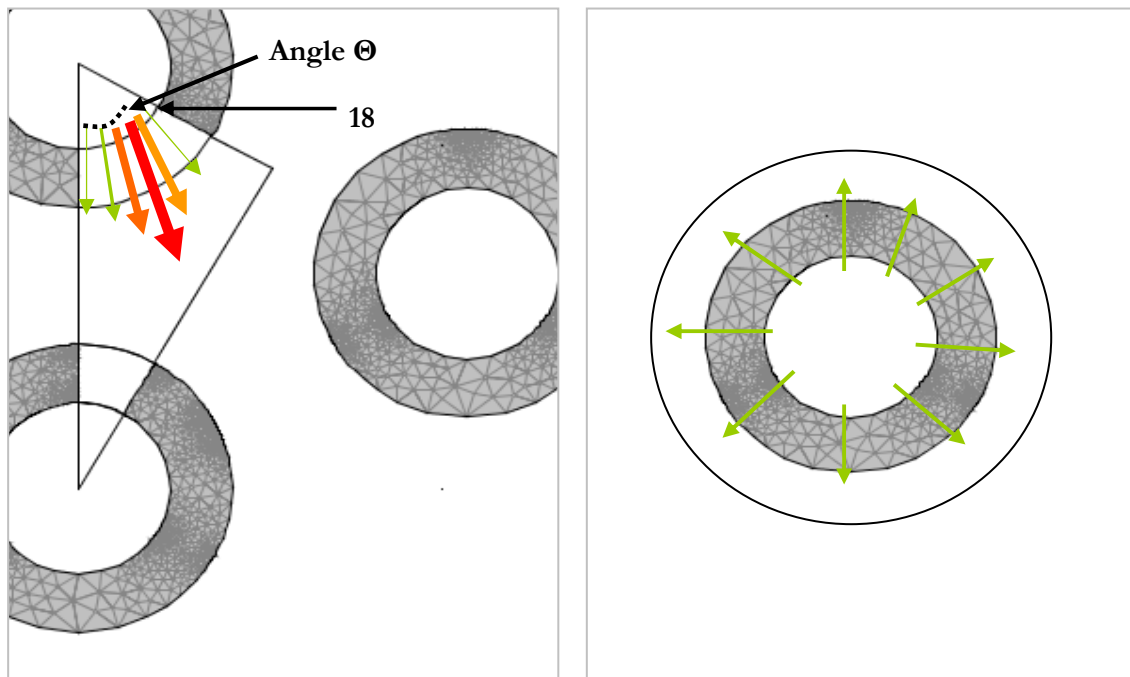


Figure III-22. Représentation schématique de la répartition des vitesses de filtration axiale en simulation 3D (gauche) et pour le modèle 2D de Happel (droite).

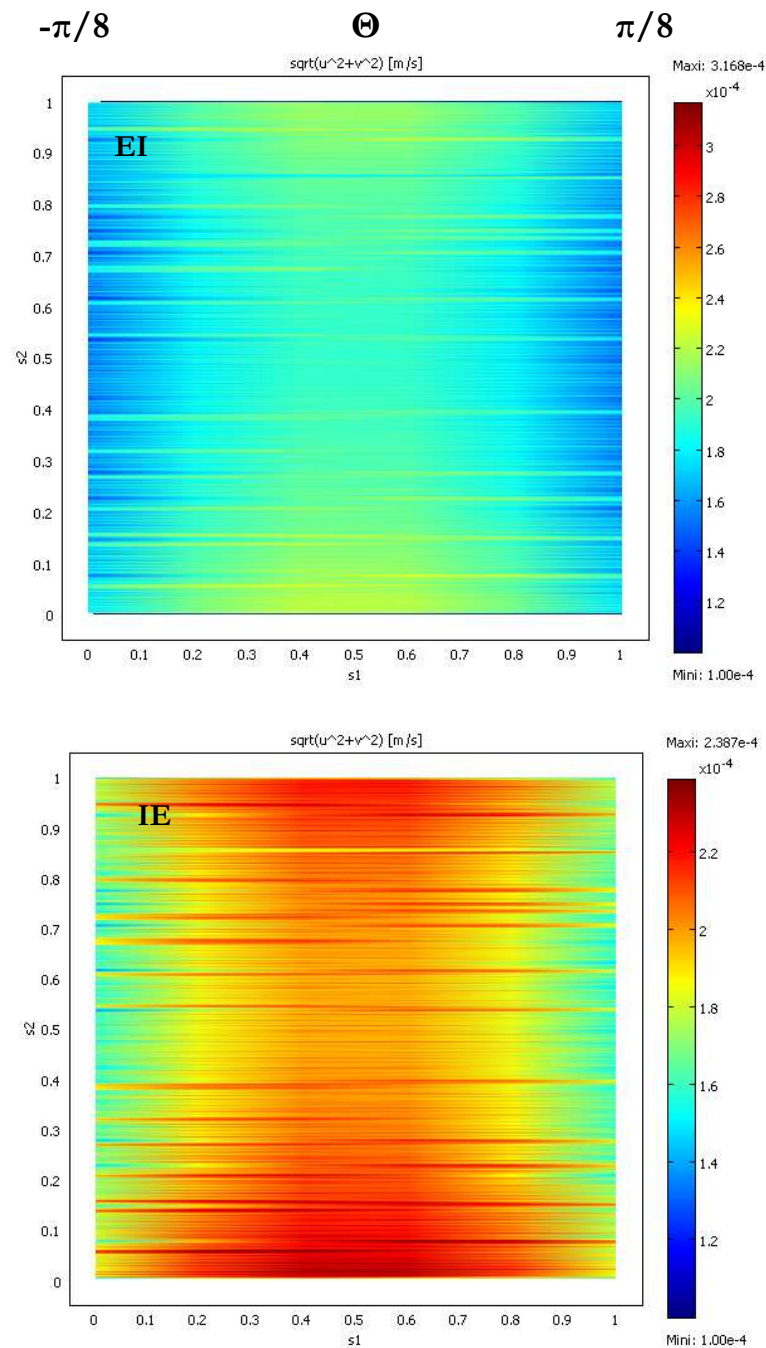


Figure III-23. Evolution de la vitesse de filtration axiale sur la frontière 18 en fonction de la longueur de la fibre pour $\Phi=0.8$.

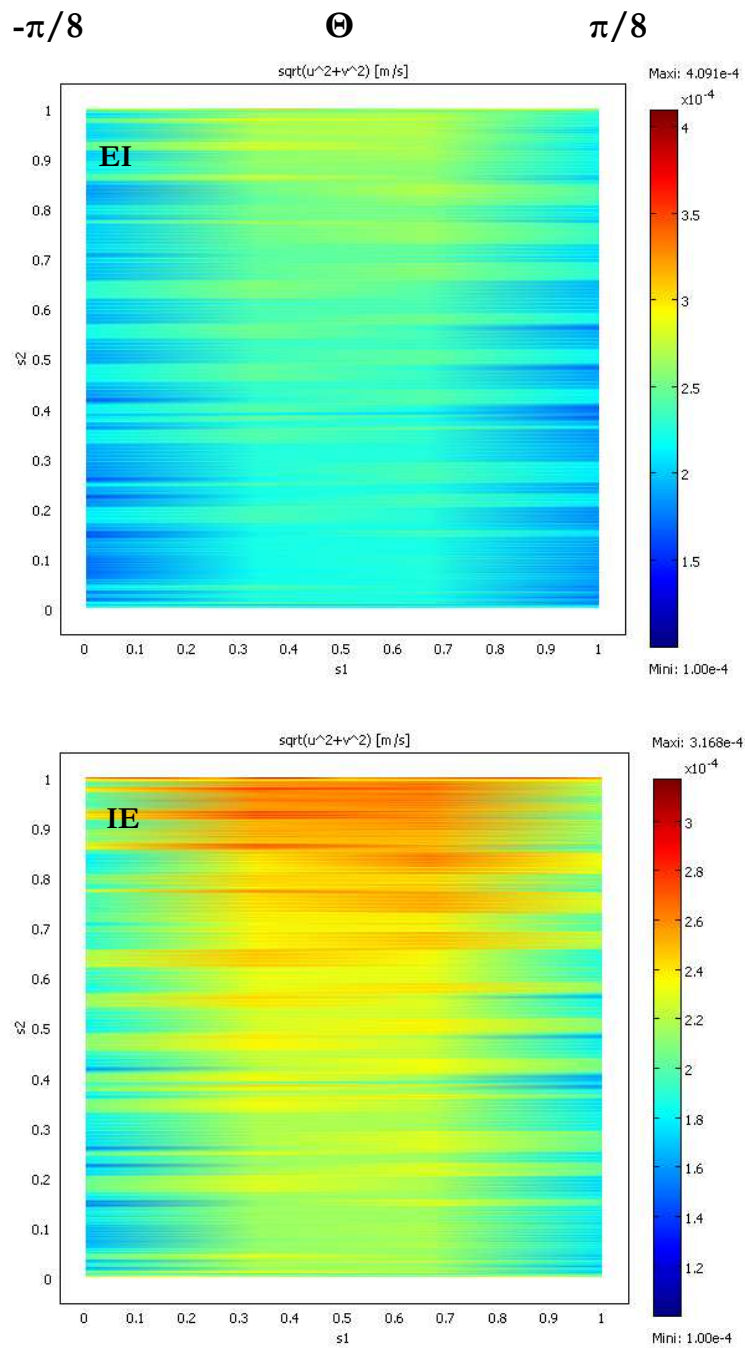


Figure III-24. Evolution de la vitesse de filtration axiale sur la frontière 18 en fonction de la longueur de la fibre pour $\Phi=0.4$.

Chapitre IV : Impact de la densité de fibres sur la répartition spatiale du dépôt par une approche numérique.

IV.1 Présentation du travail, objectifs et approche.

L'article n° 1 nous a permis d'évaluer l'impact de la densité de fibres sur l'écoulement de fluide au sein des fibres creuses constituant le module de filtration et a montré que le confinement des fibres induit des zones préférentielles de filtration. Dans le prolongement, cette partie a pour objectif d'évaluer comment la compacité des fibres dans le module influe sur la répartition du dépôt lors de la filtration de suspension.

L'approche numérique utilise le code de calcul COMSOL Multiphysics. Le système étudié est le même que celui décrit dans l'article n°1, présentant la même géométrie ainsi que les mêmes conditions opératoires. Pour mémoire :

Fibre creuse:

- rayon interne $R_{\text{int}} = 125. 10^{-6} \text{ m}$
- rayon externe $R_{\text{ext}} = 210. 10^{-6} \text{ m}$
- longueur $L = 0,125 \text{ m}$

Paroi poreuse:

- perméabilité $K_m = 1.7. 10^{-16} \text{ m}^2$
- épaisseur $e_m = 85. 10^{-6} \text{ m}$

Épaisseur du canal externe :

- $D = 25 10^{-6} \text{ m}$ pour $\Phi = 0,8$
- $D = 50 10^{-6} \text{ m}$ pour $\Phi = 0,6$
- $D = 100 10^{-6} \text{ m}$ pour $\Phi = 0,4$

Pression transmembranaire $PTM = 0,8 \text{ bar}$

Taille des particules $D_p = 5. 10^{-6} \text{ m}$ (similaire à la taille des levures retrouvés expérimentalement dans les cultures).

L'objectif est de simuler la croissance d'un dépôt à la surface de la partie poreuse des fibres creuses en prenant en compte simultanément :

1. les caractéristiques géométriques du module, en particulier le confinement des fibres et son retentissement sur l'écoulement,
2. les modifications de l'écoulement et de la géométrie dues à la présence du dépôt formé,

Ainsi, la géométrie de la partie du domaine considérée comme poreuse, constituée de la membrane et du dépôt, évolue au cours du temps du fait de la croissance du dépôt. La simulation de la croissance du dépôt et l'étude de son retentissement sur l'écoulement sera réalisé pour les deux sens de filtration possibles lors de l'utilisation de ce module de filtration afin d'analyser l'impact du sens de filtration.

Les simulations réalisées grâce à ce modèle peuvent présenter un intérêt notable pour prédire des zones préférentielles de croissance du dépôt en fonction de la compacité imposée au module de filtration. Les éléments de conclusion tirés de ce chapitre viendront alimenter la discussion du chapitre VI.

Ce travail est soumis, dans le cadre du *Congrès de la Société Française de Génie des Procédés 2009*, à la revue *ICherm*

Modelling the effect of packing density on filtration performances in hollow fiber microfiltration membrane: spatial study of cake growth.

GÜNTHER Jan ^{1,2}, SCHMITZ Philippe ¹, ALBASI Claire ², LAFFORGUE Christine ¹,

¹ Laboratoire d'ingénierie des Systèmes Biologiques et des Procédés, UMR INSA CNRS 5504, UMR INSA INRA 792, 135 avenue de Rangueil, 31077 Toulouse cedex 04, France

² Laboratoire de Génie Chimique, UMR CNRS 5503, 5 rue Paulin Talabot, BP 1301, 31106 Toulouse cedex 01, France

Abstract:

A numerical method was developed to obtain the effect of packing density on spatial cake growth along fiber length of a hollow fiber module. This filtration device is the heart of a specific membrane bioreactor which allows a physical separation of the species in two tanks, thanks to the hollow fiber module. To ensure cultivation conditions similar than the ones in a same reactor, filtration stage should not be restrictive for biological kinetics. Since high fiber density results in a worse inter-fiber hydrodynamic environment, optimization of fiber density may be important for improvement of the performance of this submerged system. A two dimensional model was first designed to simulate the variations of flow and filtration velocity along a single fiber of the hollow fiber module in a simplified approach considering an annular region of fluid surrounding the fiber to account for the packing density. Then, to study the spatial deposition of the particles which form a fouling cake, the model was completed and a range of packing densities was tested. The results show drastic differences in cake growth along the fiber with packing density and underlined the effect of design parameters in filtration performances of a hollow fiber module.

Keyword: Hollow fiber, fouling cake, membrane bioreactor.

IV.2 Introduction.

Microfiltration membranes are used in a variety of particle separation processes, ranging from turbidity removal from waste water [1, 2] to haze removal from wine, beer and fruit juice [3]. Not only due to its low manufacturing cost and its simple handling, hollow fiber modules have become ubiquitous for their high membrane area per unit volume of module, compared to other configurations of membranes. Moreover, due to low aspect-ratio hollow fibers membrane offers high mechanical strength and backwashing capability at low module energy cost, compared to alternatives such as plate-and-frame, spiral wound or tubular membranes. In our application, the hollow fiber module is used inside a specific membrane bioreactor that has been previously designed in order to study microbial interactions [4]. In this device, a physical separation of the species in two tanks is obtained thanks to the hollow fiber module. Thus, growth of each microbial species can be easily analyzed as pure culture. However, in order to ensure environmental conditions similar than the ones that could be obtained if all the microbial species were in a same reactor, filtration stage should not be restrictive for biological kinetics and all soluble compounds taking part in microbial activity must cross the membrane.

However, the main disadvantages of this module configuration happen at high packing densities. Indeed, hollow fiber modules need empty spaces among fiber bundles and around each fiber, not only for up-flow permeate, but also to facilitate the mass transfer between the fiber from the heart to the periphery of the bundle. For high packing densities mass transfer and permeate flow could then be limited.

Many authors have studied experimentally the influence of fiber bundle characteristics in microfiltration performance and particularly the impact of packing density on permeate flux [5-9]. Hollow fiber membrane module can provide an extremely high mass transfer area mainly because of its high packing density of extreme fine hollow fibers.

Wu and Chen [9] have studied the contribution of flow distribution to shell-side mass transfer performance in randomly packed hollow fiber modules. They pointed out that the observed mass transfer coefficients decreased rapidly with increasing packing density until 50 % of the volume fraction was reached and increased again at higher packing densities. In other words, fiber packing density could change shell-side mass transfer coefficient as much as five fold in their hollow fiber module used for water degassing.

Zheng *et al.* [8] have analysed the effects of the fiber distribution or fiber random packing, on the mass transfer coefficient for a parallel flow module. They found a misdistribution of fluid flow in

the shell side of the randomly packed hollow fiber module that became more serious when the packing density was increased.

Chang *et al.* [6] studied experimentally in the case of gaz/liquid two phase flows, the influence of fiber diameter on filtration and flux distribution for hollow fiber modules. They also examined the influence of fiber arrangement; two kinds of arrangement were studied with 4 and 8 fibers, and for two channel widths (24 and 8 mm). They showed that an increased fiber density decreased the rate of flux decline. They linked this phenomenon to a decrease in bubble size and in a worse inter-fiber hydrodynamic environment.

High packing density can also promote fouling phenomenon due to the unfavourable hydrodynamic conditions within the fibers [10]. Flux decline is a ubiquitous feature of membrane separation processes due to an accumulation of retained material in the form of a cake or a precipitate at the membrane surface, or such as adsorption within the membrane pores that increase the filtration resistance of the membrane. In dead end microfiltration systems, the flux decline is determined by various features of the feed stream, that influence the filtration resistance of the retained cake [11, 12]. In hollow fiber membrane systems, flux decline mechanisms are further complicated. Several causes can be described and pressure drop gradients are considered at first. Indeed, for vertically mounted hollow fiber membrane module, in outside/in filtration mode, when pressure is applied to the external side of the fiber in order to obtain permeate flow through the porous membrane, some extent of internal pressure drop occur along the membrane while permeate is flowing in the fiber lumen. The local transmembrane pressure, which is obtained from the difference between inside and outside pressure, is higher at the exit and lower at the entrance of flow. Therefore the local flux at the permeate exit is higher resulting in a more rapid membrane fouling in this area [6, 7]. These gradients depend upon fiber design parameters such as fiber length, fiber diameter and membrane permeability [10].

Different numerical two dimensional models have been performed in the literature in order to simulate the flow in membrane or thin channels with permeable walls [10, 13-17]. Some authors have based their models on a module design in which the position of the feed inlet creates radial pressure drop, i.e. the inlet via a tube situated at the centre of the bundle [18], or the inlet at the outer surface of the bundle [19]. However these models generally underestimate the pressure drop because of compaction of the fibers.

The CFD based model that was developed in our previous work [7] explored the impact of geometrical parameters of hollow fibers on filtration performances of the module. An axisymmetric 2D model operating in the dead end filtration mode has underlined the major effect of packing

densities on variation of pressure along the fiber length and spatial repartition of permeate velocity all along the fiber length. In the present study, the previous results are developed and completed by modelling the spatial deposition of a filtration cake along the fiber length in case of a hollow fiber module that is usually used in an experimental device [20]. Indeed, for this device, in the same way than for other fiber bundles, studies have shown the significant effect of hydrodynamics on filtration performances, and on the growth of a fouling cake. Consequently, in order to get the best separation performances the module design could be optimized taking into account the links between its geometry, hydrodynamics and fouling.

IV.3 Material and Methods.

IV.3.1 Referring experimental device and parameters used for simulations.

The experimental device used as a model corresponds to a hollow fiber module immersed in a reactor. The transmembrane pressure was maintained thanks to compressed air (Figure IV-1). As in the membrane bioreactor used for the study of microbial interactions [4, 20], this system could be used both in inside/out (IO) or outside/in (OI) filtration modes, depending on compression sense (Figure IV-1). The internal and external diameters of the fibers were 0.25 mm and 0.43 mm respectively and their length was 0.125 m.

For numerical application, the parameter values correspond to the experimental device and different external channel width values are considered in order to represent different packing densities (Tableau IV-1).

Tableau IV-1. Summary of parameters values used for numerical model*Hollow fiber:*

3. internal radius $R_{\text{int}} = 125 \text{ e}^{-6} \text{ m}$
4. external radius $R_{\text{ext}} = 210 \text{ e}^{-6} \text{ m}$
5. length $L = 0.125 \text{ m}$

Porous wall:

6. permeability $K_m = 1.7 \text{ e}^{-16} \text{ m}^2$
7. thickness $e_m = 85 \text{ }\mu\text{m}$

External channel thickness :

8. $D = 25 \text{ e}^{-6} \text{ m}$ for $\Phi = 0.8$
9. $D = 50 \text{ e}^{-6} \text{ m}$ for $\Phi = 0.6$
10. $D = 100 \text{ e}^{-6} \text{ m}$ for $\Phi = 0.4$

Transmembrane pressure $\Delta P = 0.8 \text{ bar}$ *Particle size $\Delta p = 5 \text{ e}^{-6} \text{ m}$ (similar as yeast size found in the experimental device)*

IV.3.2 Flow modelling.

The modelling of hydrodynamics in a fiber bundle is a complex problem since the system is composed of a large number of single elements and can exhibit a great heterogeneity. To estimate the different local characteristic parameters in a filtration module for different packing densities, the module can be divided into sub-cells. A few studies considering random fiber arrangement [21, 22] have used Voronoi tessellation mathematical method to describe the subdivision of space between randomly packed objects, by drawing straight boundaries equidistant between neighbouring objects forming polygonal cells. However, for irregular polygons, the velocity profiles in the cell were difficult to obtain.

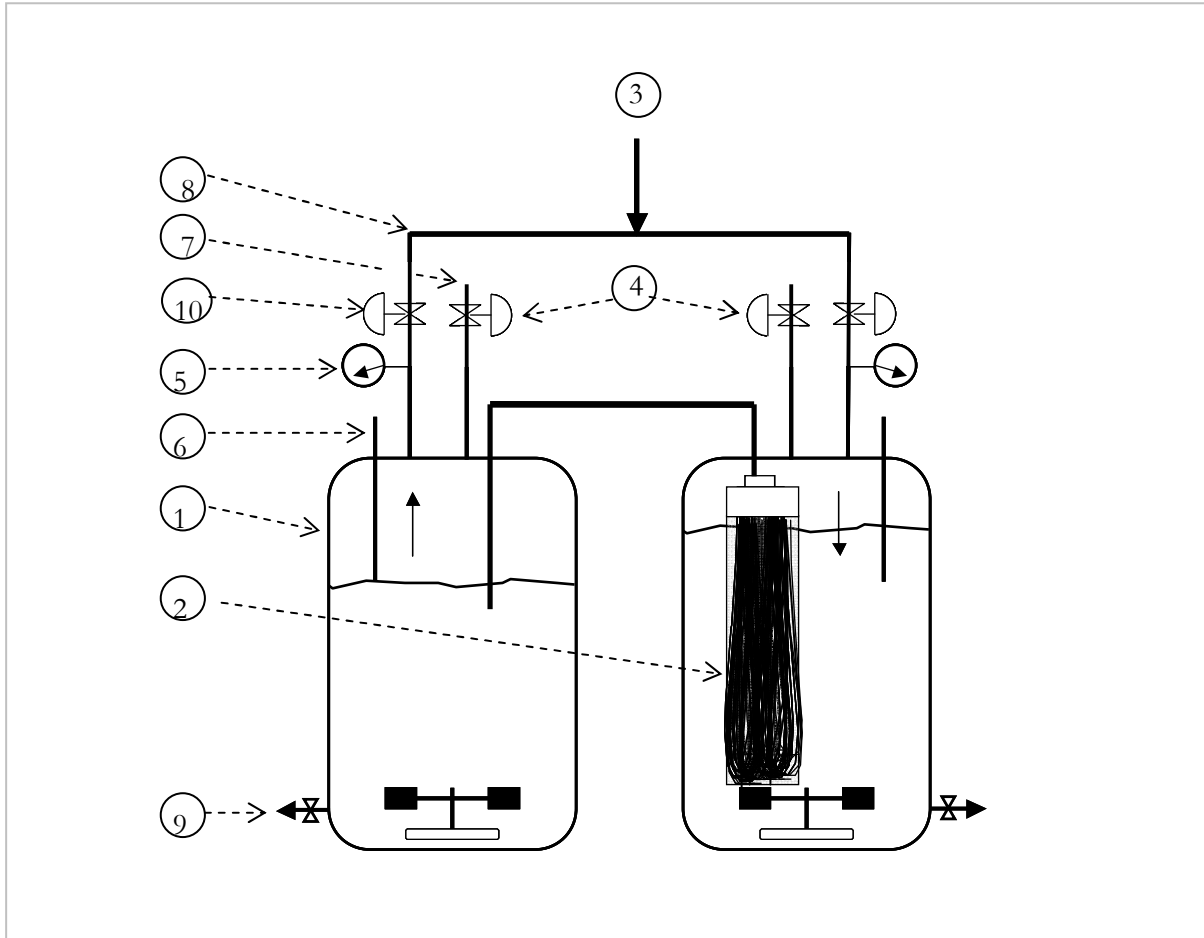


Figure IV-1. Schematic design of the double-membrane-bioreactor; 1: Biological reactor, 2: membrane, 3: compressed air, 4: electro-valve 1, 5: pressure gauge, 6: level gauge, 7: gas outlet, 8: air inlet, 9: sampling outlet, 10: electro-valve 2.

In this study, according to Happel's free surface model [23, 24], the hollow fiber bundle was modelling as an arrangement of perfectly regular cylinders and the fluid flow was calculated on the basis of a unit cell of this arrangement. It assumes that the bundle is an assemblage of cylinders and the fluid is flowing between two concentric cylinders. The inner cylinder consists of one of the fiber in the assemblage of radius, R_{ext} , and the outer cylinder of a fluid envelope with a free surface of radius $(R_{ext}+D)$ (Figure IV-2). The relative volume of fluid to solid corresponds to the relative volume of fluid to solid in the assemblage of cylinders. It is assumed that, at a distance from the disturbance to fluid motion caused by a cylinder, ie a fiber, the velocity of flow will not be affected by the exact shape of the outside boundary. The "free surface" boundary condition is considered [23]. The fluid flows in the annular space between the cylinder of radius R_{ext} and the fluid envelope of thickness D (Figure IV-2). Boundary conditions give:

$$V_z = 0 \text{ at } r = R_{ext}$$

Équation IV-1

$$\frac{dV_z}{dr} = 0 \text{ at } r = R_{\text{ext}} + D \quad \text{Équation IV-2}$$

The packing density correspond to the ratio of total surface area of membrane per cross-sectional area of the module [25]. According to this definition, for a fixed fiber length and lumen, packing density increases proportionally with fiber number. The fiber density is determined by considering the module as a regular arrangement of disks in a plane. Thus, by taking a hexagonal optimal stacking (Figure IV-3), the basic mesh is a rhombus whose vertices are the six discs neighbours. Its surface is then:

$$S_l = 2R_{\text{ext}} \times (2R_{\text{ext}} \frac{\sqrt{3}}{2}) = 2\sqrt{3} \times R_{\text{ext}}^2 \quad \text{Équation IV-3}$$

and contains the equivalent of a disc (R_{ext} is the outer radius of a fiber). The proportion of area covered, i.e. fiber density could be written:

$$\Phi = \frac{\pi \cdot R_{\text{ext}}^2}{2\sqrt{3} \cdot (R_{\text{ext}} + D)^2} \quad \text{Équation IV-4}$$

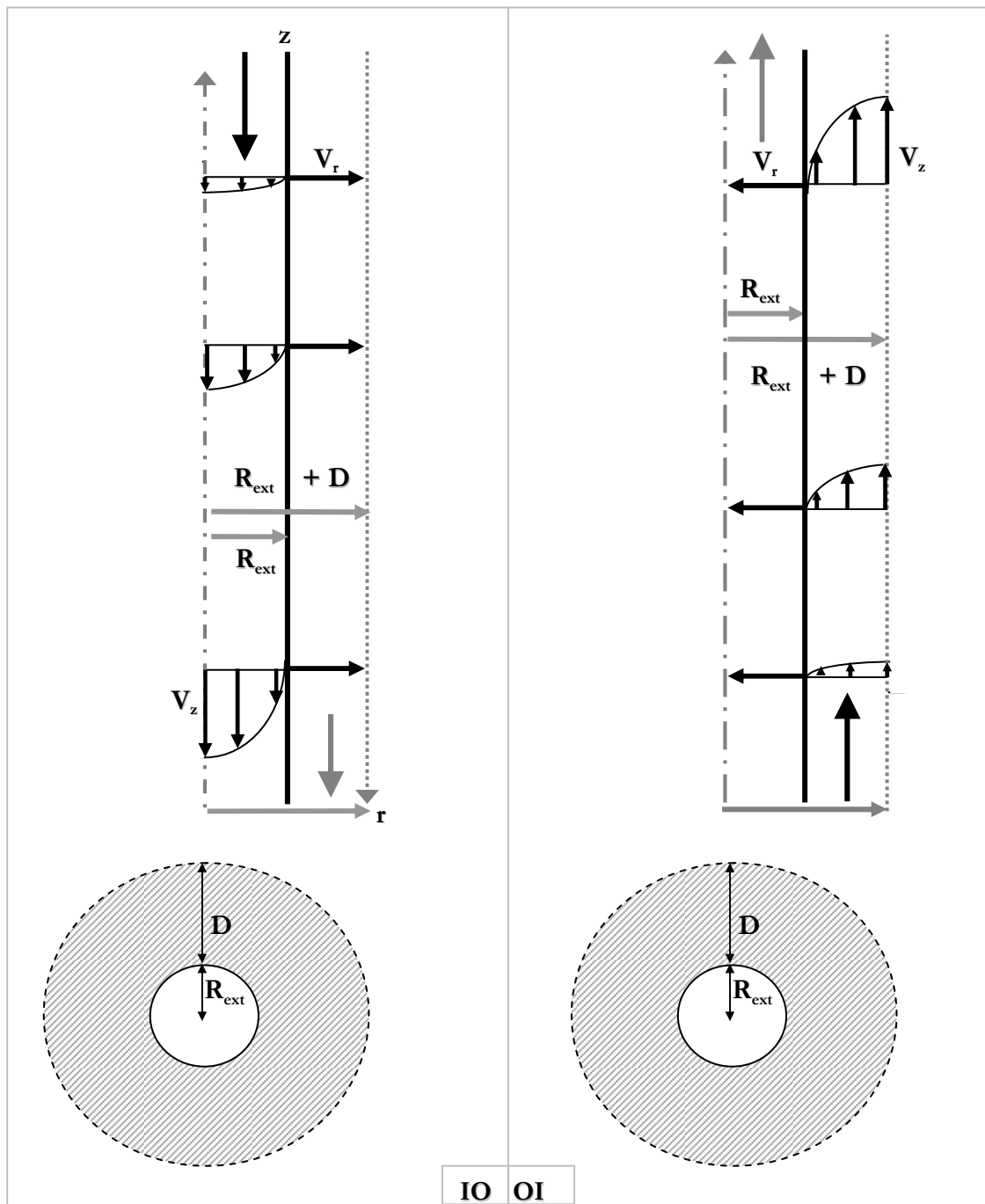


Figure IV-2. Illustration of fluid flow through the inner channel and outer channel respectively for IO and OI filtration mode.

IV.3.2.1 Resolution of the model

The commercially-available finite element code COMSOL multiphysics™ was used to solve the flow in channels and porous wall. The fluid was considered to be Newtonian and in channels, the flow was stationary, laminar and incompressible (Figure IV-3, sub-domain I and E). The Navier Stokes equations reflecting the mass and momentum balances can be solved:

$$\nabla \cdot \vec{v} = 0 \quad \text{Équation IV-5}$$

$$\rho(\vec{v} \cdot \nabla) \vec{v} = -\nabla P + \mu \nabla^2 \vec{v} \quad \text{Équation IV-6}$$

where \vec{v} is the fluid velocity, P the pressure, and μ the dynamic viscosity. The model of Darcy-Brinkman was used, and the equations were numerically solved in the porous medium:

$$\mu_{eff} \Delta \vec{v} - \vec{\nabla} P - \frac{\mu}{K} \vec{v} = 0 \quad \text{Équation IV-7}$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{v} = 0 \quad \text{Équation IV-8}$$

where μ_{eff} is the effective dynamic viscosity, classically considered as μ/ε , ε represents the porosity of the porous sub domain, and K the intrinsic permeability of the porous sub domain (Figure IV-3, sub-domain M) .

It was also considered that the flow was a single phase and the fibers are immobile. A typical geometry of the hollow fiber cylindrical module is shown in Figure IV-2: the cross-section is

- normal to the main flow in inside/out filtration mode,
- parallel in outside/in filtration mode.

The geometric domain considered consisted of a single fiber surrounded by a fluid layer.

IV.3.2.2 Selected boundaries conditions (Figure IV-3):

* Inlet : uniform pressure of 0.8 bar with perpendicular flow.

- inside/out filtration mode (IO): for $z = 0.125$ m, $P = 0.8$ bar
- outside/in filtration mode (OI): for $z = 0$ m, $P = 0.8$ bar.

* Outlet : pressure is set to zero.

- IO: for $z = 0$ m, $P=0$
- OI: for $z = 0.125$ m, $P=0$

* *no-slip* condition was set at the non porous and porous walls (solid black line). This condition was retained instead of a slip condition at the fluid/porous interface [26] that could take into account the physical behaviour of the fluid. Indeed, according to a previous paper [27] the aspect ratio between the pore diameter and the height of the channel is low and the slip velocity at the fluid/porous interface can be neglected.

* *axisymmetric boundaries* was set for $r=0$, (and vanishing stresses in z direction).

* *symmetric boundary* was set in thin solid black lines ($r = R_{\text{ext}}+D$).

IV.3.2.3 Calculation mesh.

Typically, a mesh with 100 cells along the fiber, 20 cells across the inner channel, and 10 cells across the porous medium were used. For the external annular channel, 5 cells, 10 cells and 20 cells were used respectively for $D = 25 \mu\text{m}$, $D = 50 \mu\text{m}$ and $D = 100 \mu\text{m}$. Moreover, a non uniform mesh distribution was used for internal and external channel, with the cell density being higher at the membrane interface and special care was taken to avoid excessively high cell stretch rates. In all the three cases, we checked that filtration velocity profile along the fiber and flow rate for the external channel were independent of the mesh used. Indeed, using a mesh five times smaller, the difference was below 0.2 % and 0.04 %, respectively for the filtration velocity and for the flow rate values.

IV.3.3 Deposit cake modelling.

Particles are transported with convection and diffusion to the membrane. Inertial and gravity effect could act on particles. Due to their size and density, it is assumed that micro-organisms are only transported by fluid flow, and then follow the stream lines of the fluid. The molecular interaction forces allow them to adhere to the membrane surface and/or to the micro-organisms

already adhered as soon as they make contact. Cake growth, resulting in accumulation of micro organisms on membrane surface during filtration, is here modelled with a mesh deformation of porous sub domain constituted by the porous wall and the deposit cake. This will be taken by a shift of the boundary between fluid domain and porous domains. This is associated with a mesh deformation of the two sub domain [28]. Local permeability of the new porous sub domain is given by considering local hydraulic resistance of the membrane and the deposit cake like in-series resistance. In other words, fluid flow in the porous medium is considered uniform and oriented in r direction in any section of z -axis constant. Moving velocity of the boundary in the r -axis direction and cake permeability are the new parameters to consider. The velocity of the mobile boundary is established with a mass balance:

$$\vec{V}_d(t) = -\frac{\frac{dm_d}{dt}}{\rho_p \cdot (1-\varepsilon)} \frac{\vec{V}_f(t)}{\|\vec{V}_f(t)\|} \quad \text{Équation IV-9}$$

where m_d is the mass of particles per surface unit at t (Kg.m^{-2}), ρ_p the density of the particles (Kg.m^{-3}), ε the cake porosity. $\vec{V}_f(t)$ is the fluid velocity at t on the boundary, calculated by COMSOL Multiphysics for solving coupled equation of Navier Stokes and Darcy Brinkman. Particles are supposed following fluid stream lines and the particles mass flux coming to the surface of the membrane is supposed to be proportional to the fluid velocity at the surface.

Considering dead end filtration, the mass of particles deposited per unit of surface is directly proportional to the feed concentration c :

$$\frac{dm_d}{dt} = c \times \|\vec{V}_f(t)\| \quad \text{Équation IV-10}$$

Replacing $\frac{dm_d}{dt}$ in equation II-9:

$$\vec{V}_d(t) = -\frac{c}{\rho_p \cdot (1-\varepsilon)} \vec{V}_f(t) \quad \text{Équation IV-11}$$

Considering $\frac{de_d}{dt} = \vec{V}_d(t)$, cake height is then calculated:

$$e_d(t_i) = e_d(t_{i-1}) + \|\vec{V}_d(t_{i-1})\| \times (t_i - t_{i-1}) \quad \text{Équation IV-12}$$

$$e_d(t_n) = \frac{c}{\rho_p \cdot (1 - \varepsilon)} \sum_{i=1}^n [\|\vec{V}_f(t_{i-1})\| \times (t_i - t_{i-1})] \quad \text{Équation IV-13}$$

It is necessary to fix cake porosity as entry parameter in order to calculate the displacement of the mobile boundaries. The resistance in series law allows calculating, for each time step, the total intrinsic permeability K_t of “cake plus membrane”:

$$\frac{e_t}{K_t} = \frac{e_d}{K_d} + \frac{e_m}{K_m} \quad \text{Équation IV-14}$$

Calcul is performed according to the following steps:

- At $t=0$, cake height and porosity are equal to zero with $K_t=K_m$.
- Initial fluid velocity $\vec{V}_f(0)$ is calculated at fluid membrane interface.
- At Δt , a cake height is calculated from $\vec{V}_f(0)$.
- Cake permeability is then calculated from Carman Kozeny equation with $k=5$ [29].
- Total permeability K_t is determined
- A new $\vec{V}_f(t)$ is calculated at the fluid-cake interface.

For each time step, cake height is calculated from the estimated velocity at the previous time step.

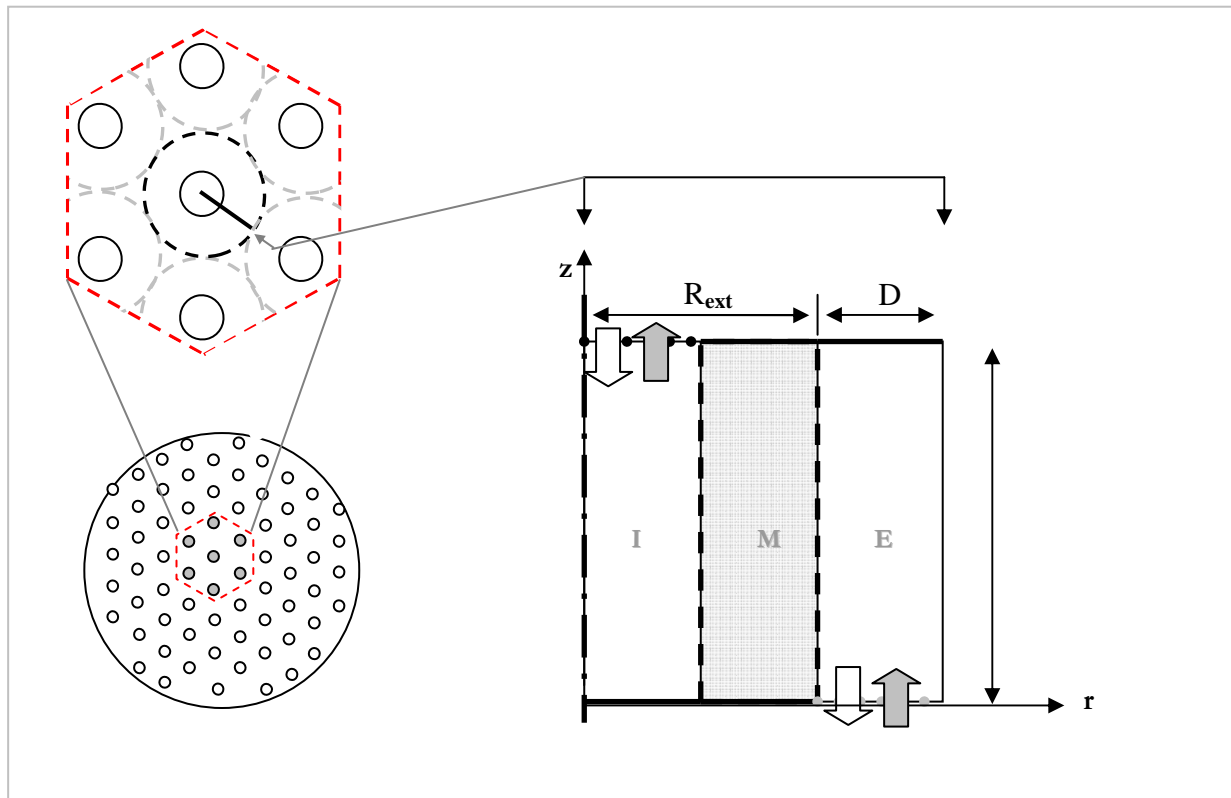


Figure IV-3. Geometrical simplification of the hollow fiber bundle and scheme of the model with I : internal channel, M : membrane, E : external channel, R_{ext} : outer radius, D : distance between two fibers, L : length of the fiber.

IV.4 Results and Analyses

IV.4.1 Inside/Out filtration mode (IO).

Axial flux without particle (Figure IV-4a) and for incompressible cake with constant porosity (Figure IV-4, b, c, d) are shown in Figure IV-4. Considering axial flux profile without particle, previous work [7] has shown that space restriction in the annulus due to an increase in packing density, leads to a higher pressure at the top of the external channel than at the bottom. This phenomenon generates a high gradient of local transmembrane pressure along the fiber. Then, filtration takes place preferentially in the region where the local transmembrane pressure is higher, i.e. at the bottom of the fiber. Indeed, axial flux profile is 70 % higher at the bottom of the fiber than at the top. Conversely filtration takes place preferentially at the top of the fiber for low packing densities ($\Phi = 0.4$) leading to a value 25 % higher.

The flux profile represented in Figure IV-4b,c,d, corresponds to a decline in filtration velocity from $t=10$ sec to $t=30$ sec for three packing densities. For high packing density (Figure IV-4b) ($\Phi=0.8$), near the entrance of the fiber, the filtration flux is lower than at the bottom due to low filtration velocity (low local transmembrane pressure). The evolution of these axial flux profiles with time showed a homogenization of filtration velocity along the fiber. Nevertheless, as can be seen in Figure IV-5, the deposit cake is 50 % and 30 % higher on the bottom of the fiber respectively for 10 sec, and 30 sec experiment. Considering medium packing density (Figure IV-4c) ($\Phi = 0.6$), the axial filtration flux profile is higher near the entrance and at the bottom of the fiber for the first 10 sec. The profile show a more homogenous shape at $t = 30$ sec. This tendency is confirmed on Figure IV-5b which show higher cake height on both extremity of the fiber at the initial stage and at the end of the filtration. Finally considering low packing density, the situation is completely at the opposite of high packing density. Axial flux profile show higher filtration velocities at the top of the fiber leading to a higher cake height near the entrance. The results shown in this last case are closed to filtration models described in the literature [30, 31].

To sum up, the flux profile of the incompressible cake in IO filtration mode for the three packing densities retains the initial shape. Indeed, as the flux decreases, the profiles become more uniform, although the shape remains constant.

IV.4.2 Outside/In filtration mode (OI).

Axial flux without particle (Figure IV-6a) for incompressible cake with constant porosity (Figure IV-6b,c,d) are shown in Figure IV-6. Considering high (Figure IV-6b) and medium (Figure IV-6c) packing density, in the beginning of the filtration, the highest values of flux is obtained at the middle end of the hollow fiber. The flux is 95 % and 60 % higher near the entrance (at the bottom of the fiber) respectively for $\Phi = 0.8$ and $\Phi = 0.6$. In the course of filtration the flux decreases and keeps its initial shape. For low packing density, axial flux profiles is more homogenous, filtration takes place rather at the both end of the fiber in the beginning of the filtration and near the entrance at the end of the filtration. These first three plots show that decreasing packing density leads to a higher filtration flux and a more homogenous axial flux profile along the fiber.

Spatial deposition of cake along the fiber length is directly the consequence of preferential area of filtration described above. Cake thickness is increasing along the fiber from the middle to the end of the fiber, for high and medium packing densities retaining the initial shape. Considering low packing density, cake thickness becomes more inhomogeneous with filtration time showing better cake deposition at both extremity of the fiber. The overall cake deposition along the fiber is higher but more homogenous than higher packing density.

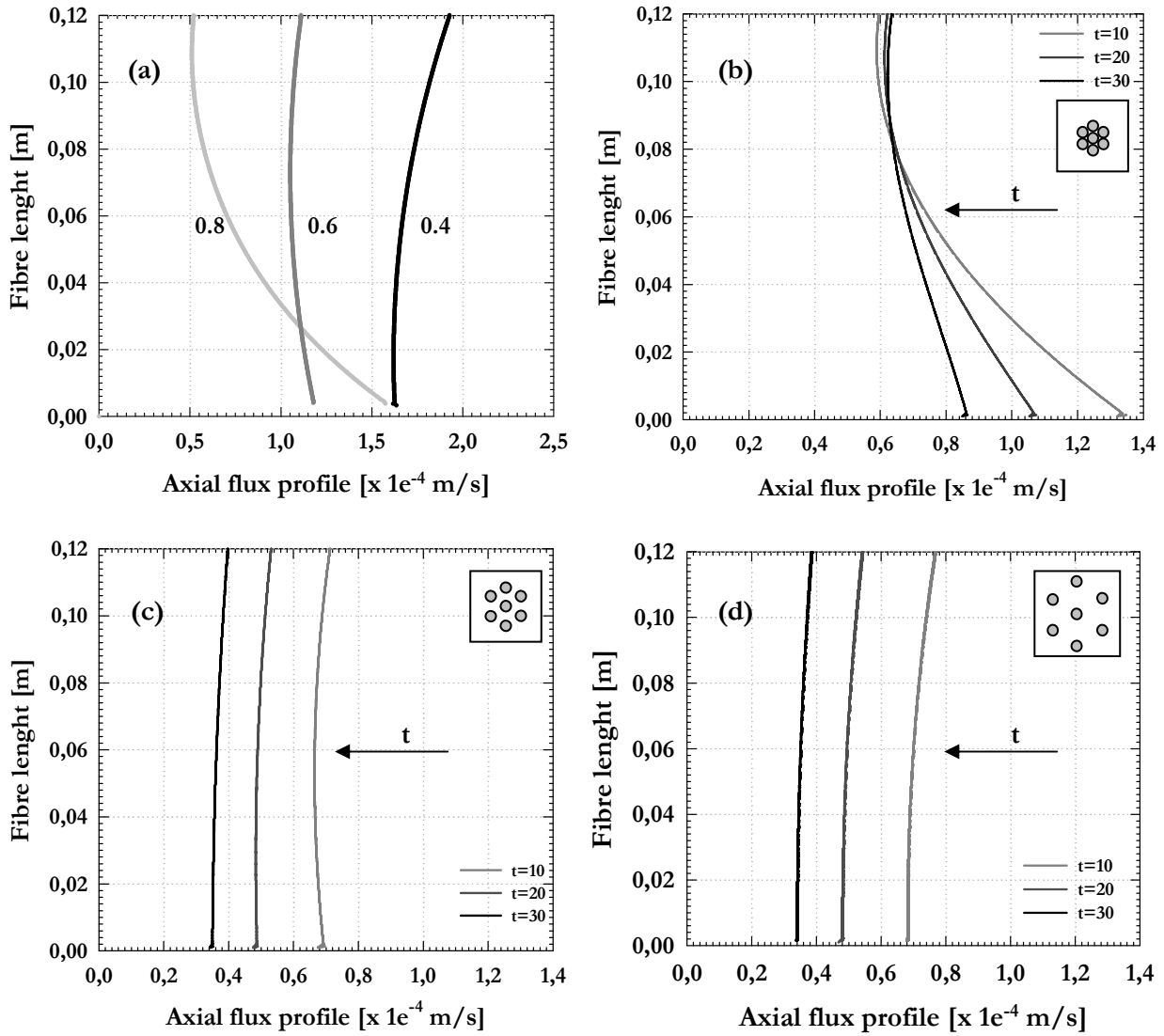


Figure IV-4. Axial flux profiles for IO filtration mode without particles (a), and for fouling of the fiber for three packing densities with time: (b) $\Phi = 0.8$, (c) $\Phi = 0.6$, (d) $\Phi = 0.4$

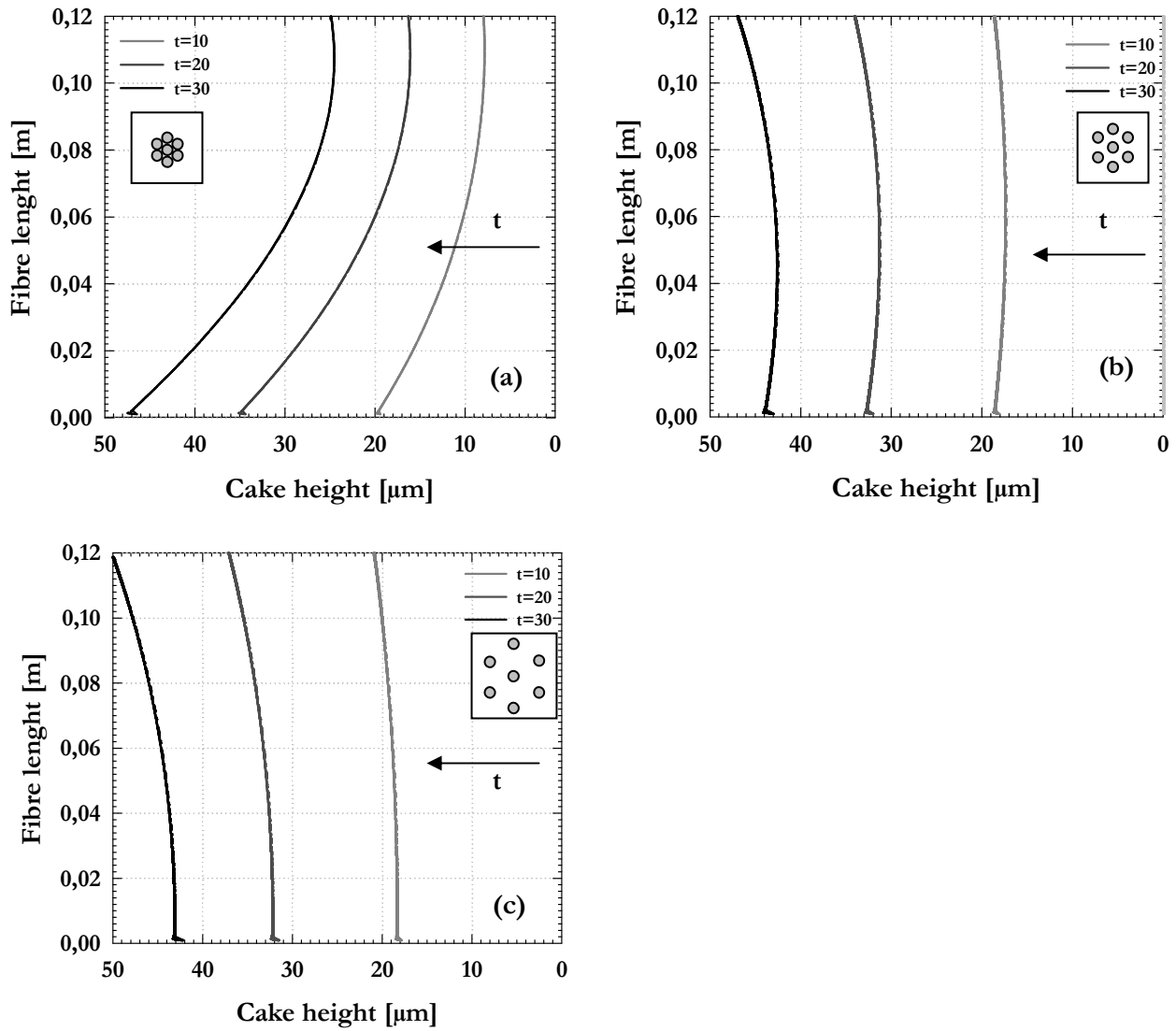


Figure IV-5. Cake height profile for IO filtration mode. (a) : $\Phi=0.8$, (b) $\Phi=0.6$, (c) $\Phi=0.4$.

IV.5 Discussion and Conclusions

The impact of packing density on fouling of hollow fiber membranes could be described in three distinct mechanisms, characterised by preferential area of cake deposition on fiber length. These distinct patterns of particle deposition onto membrane surface are caused by the non uniform axial flux profile, which depends upon membrane permeability and packing densities.

1 - The first mechanism is linked to space restriction in the external annulus, described in this study as high packing density. It is characterised as shown in Figure IV-5a and Figure IV-7a, by a preferential deposition from the middle to the bottom of the fiber. Deposition is initially greatest where the flux is highest. The most productive region of membrane is then fouled first and axial filtration flux decrease more rapidly in this area as shown in Figure IV-4b and Figure IV-6b. Nevertheless the shapes are different considering IO or OI filtration mode and the ratio of the cake thickness at the end to the cake thickness at the beginning of the fiber is ten fold higher in OI than in IO filtration mode.

2 - As the packing density decreases, the gradient in filtration velocity along the fiber becomes more homogenous. Indeed, in this second mechanism, the gradient in pressure drop generated in the external channel is more homogenous and compensated by the gradient in pressure drop due to the increase of the external annulus thickness. As the flux decreases rapidly near the entrance, the flux decrease less rapidly further back along the fiber and a more uniform flux profiles evolves. Membrane surface area which is not used effectively at high packing density becomes more developed. As a result, the rate of cake growth is higher as shown in Figure IV-5b and Figure IV-7b.

3 - For very low packing density, fiber behaves as it was without neighbours, the filtration velocity along the fiber is independent of packing density. This third mechanism is showed in Figure IV-4a for filtration without particles and in Figure IV-5c for filtration with particles. In a non-fouling system the flux is highest near the entrance of the fiber. In a fouling system, deposition onto membrane surface is initially greater near the entrance. Nevertheless, the shape of cake growth in Outside/In filtration mode is different. This could be explained by a small effect of external channel thickness on gradient in pressure drop.

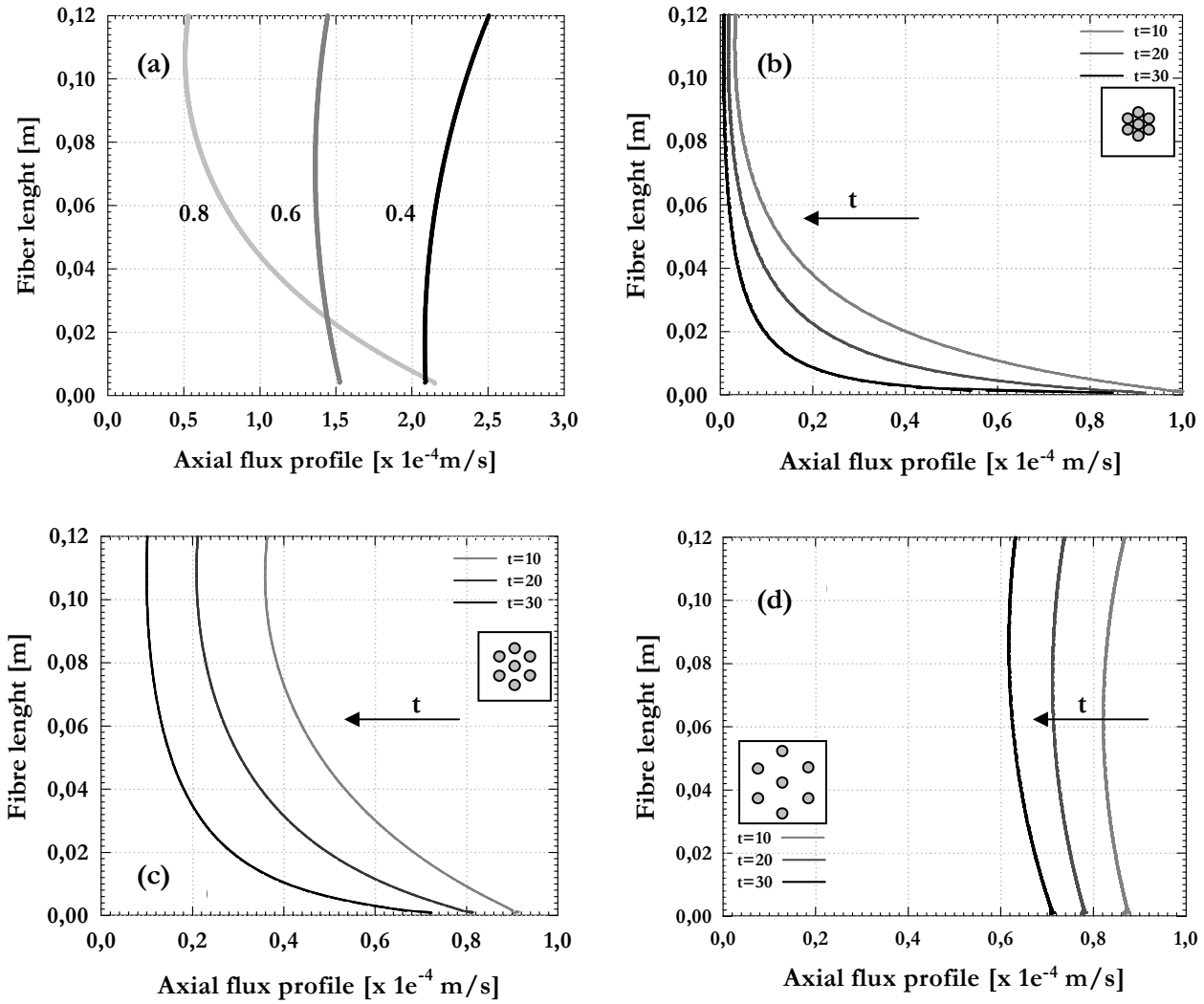


Figure IV-6. Axial flux profiles for OI filtration mode without particles (a), and for fouling of the fiber for three packing densities with time: (b) $\Phi = 0.8$, (c) $\Phi = 0.6$, (d) $\Phi = 0.4$.

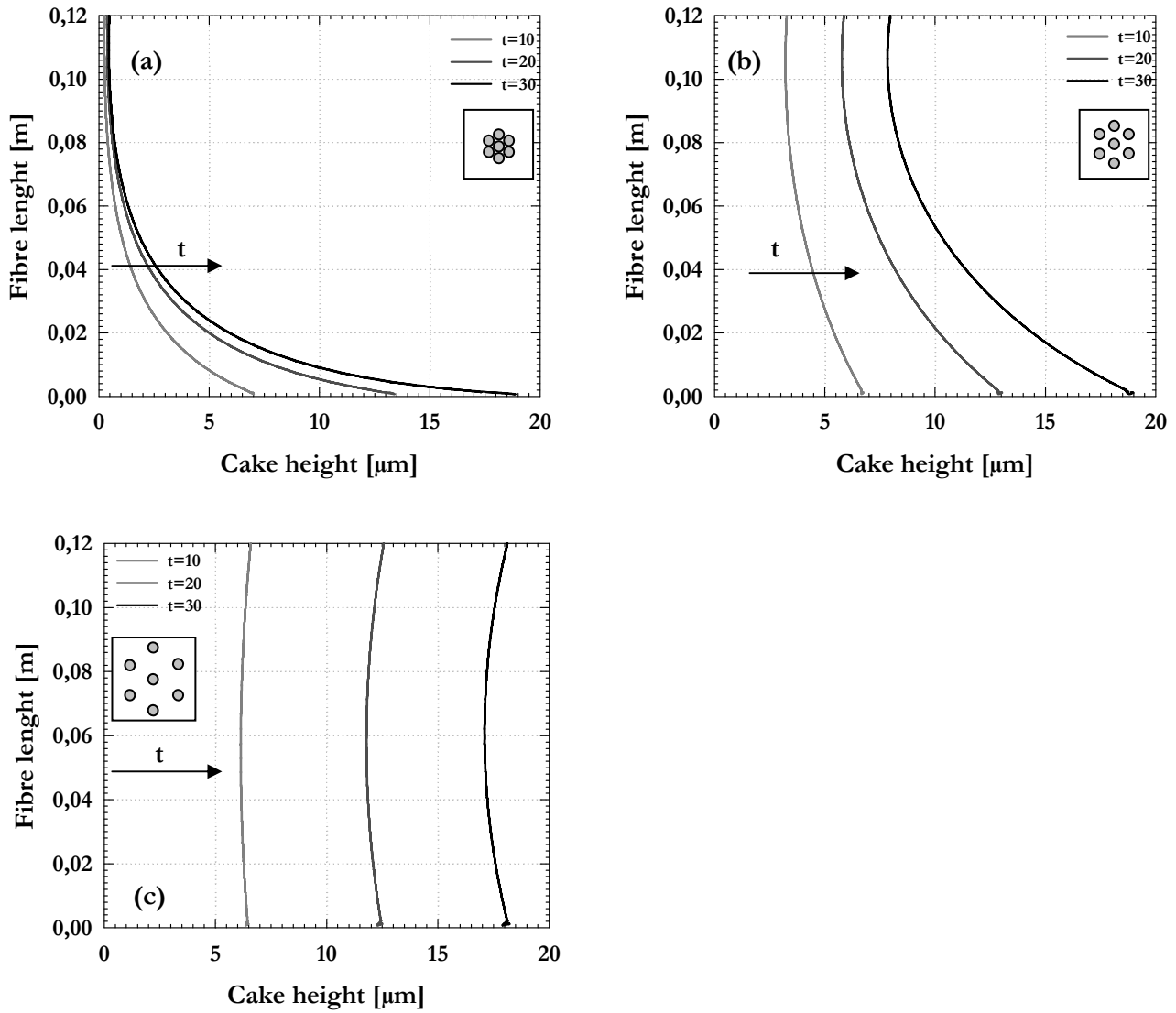


Figure IV-7. Cake height profile for OI filtration mode. (a) : $\Phi = 0.8$, (b) $\Phi = 0.6$, (c) $\Phi = 0.4$.

In conclusion, the contribution to spatial cake growth along the fiber from packing density has been described using a general handling two dimensional axisymmetric model which considers a coupled physical problem: fluid flow in a channel and through porous media. For simplicity, cake properties like compressibility, specifics of the feed and non convective transport phenomena are not included. A non uniform filtration velocity along the fiber is ubiquitous in hollow fiber filtration and leads to a non uniform particle deposition and cake growth. The model showed an inversion of pattern of foulants deposition at high packing density compared to low packing density, which could be considered as fiber without neighbours. This phenomenon leads to a higher deposition in the bottom of the fiber in outside/in and inside/out filtration mode.

This approach has illustrate the interest of model for flows and cake growth in hollow fiber modules that could be a powerful tool for the analysis of the effect of geometry of the filtration device on performances and then a useful help for the design of filtration devices.

Nomenclature:

E	External channel sub domain
I	Internal channel sub domain
IO	Inside/out filtration mode
M	Membrane or porous sub domain
OI	Outside/in filtration mode
D	thickness of the fluid envelope (m)
e_d	cake height (m)
e_m	membrane thickness (m)
e_t	cake + membrane height (m)
K_d	cake intrinsic permeability (m^2)
K_m	membrane intrinsic permeability (m^2)
K_t	cake + membrane intrinsic permeability (m^2)
L	Length of the fiber (m)
m_d	mass of particles per surface unit ($Kg.m^{-2}$)
P	Pressure (bar)
P_p	Pressure of permeate side (bar)
P_r	Pressure of retentat side (bar)
R_{ext}	Fiber radius (m)
Re_w	Wall Reynolds number
<i>Greek symbols:</i>	
ΔP_l	Locale transmembrane pressure (bar)
ϵ	porosity
μ	Dynamic fluid viscosity (Pa.s)
μ_{eff}	Effective dynamic fluid viscosity (Pa.s)
Φ	Packing density (%)

References:

1. Yeo, A.P.S., Law, A.W.K., and Fane, A.G., *Factors affecting the performance of a submerged hollow fiber bundle*. Journal of Membrane Science, 2006. **280**(1-2): p. 969.
2. Busch, J., Cruse, A., and Marquardt, W., *Modeling submerged hollow-fiber membrane filtration for wastewater treatment*. Journal of Membrane Science, 2007. **288**(1-2): p. 94.
3. Girard, B. and Fukumoto, L.R., *Membrane Processing of Fruit Juices and Beverages: A Review*. Critical Reviews in Food Science and Nutrition, 2000. **40**: p. 91.
4. Salgado Manjarrez, E., Albasi, C., and Riba, J.P., *A two-reservoir, hollow-fiber bioreactor for the study of mixed-population dynamics: Design aspects and validation of the approach*. Biotechnology and Bioengineering, 2000. **69**(4): p. 401-408.
5. Li, D., Wang, R., and Chung, T.-S., *Fabrication of lab-scale hollow fiber membrane modules with high packing density*. Separation and Purification Technology, 2004. **40**(1): p. 15.
6. Chang, S. and Fane, A.G., *The effect of fibre diameter on filtration and flux distribution -- relevance to submerged hollow fibre modules*. Journal of Membrane Science, 2001. **184**(2): p. 221.
7. Günther, J., Schmitz, Ph., Lafforgue, C., Albasi, C., *Modelling the effect of packing density on filtration performance of a hollow fibre microfiltration module used in a specific membrane bioreactor*. Nanoparticle and Particle separation 2009, 2009.
8. Zheng, J.-M., XU, Z.K., Li, J.M., Wang, S.Y., Xu, Y.Y., *Influence of random arrangement of hollow fiber membranes on shell side mass transfer performance: a novel model prediction*. Journal of Membrane Science, 2004. **236**(1-2): p. 145.
9. Wu, J. and Chen, V., *Shell-side mass transfer performance of randomly packed hollow fiber modules*. Journal of Membrane Science, 2000. **172**(1-2): p. 59.
10. Yoon, S.-H., Kim, H.-S., and I.-T. Yeom, *Optimization model of submerged hollow fiber membrane modules*. Journal of Membrane Science, 2004. **234**(1-2): p. 147.
11. McDonogh, R.M., Fell, C.J.D., and A.G. Fane, *Surface charge and permeability in the ultrafiltration of non-flocculating colloids*. Journal of Membrane Science, 1984. **21**(3): p. 285.
12. Mahesh Kumar, S. and Roy, S., *Filtration characteristics in dead-end microfiltration of living *Saccharomyces cerevisiae* cells by alumina membranes*. Desalination, 2008. **229**(1-3): p. 348.
13. Karode, S.K., *Laminar flow in channels with porous walls, revisited*. Journal of Membrane Science, 2001. **191**(1-2): p. 237.
14. Gill, W.N., Wiley, D.E., Fell, C.J.D., Fane, A.G., *Effect of viscosity on concentration polarization in ultrafiltration*. AIChE Journal, 1988. **34**(9): p. 1563-1567.
15. Yoon, S.-H., Lee, S., and Yeom, I.-T., *Experimental verification of pressure drop models in hollow fiber membrane*. Journal of Membrane Science, 2008. **310**(1-2): p. 7.
16. Nassehi, V., *Modelling of combined Navier-Stokes and Darcy flows in crossflow membrane filtration*. Chemical Engineering Science, 1998. **53**(6): p. 1253.
17. Damak, K., Ayadi A., Zeghmami, B., Schmitz, Ph., *A new Navier-Stokes and Darcy's law combined model for fluid flow in crossflow filtration tubular membranes*. Desalination, 2004. **161**(1): p. 67.

18. Kabadi, V.N., Doshi, M.R., and W.N. Gill, *Radial flow hollow fiber reverse osmosis: experiments and theory*. Chemical Engineering Communications, 1979. **3**(4): p. 339 - 365.
19. Brinkert, L., Paris, P., Renner, M., Espenan, J.M., Aptel, P., *Pressure drops in radial flow membrane modules for ultrafiltration hollow fibers*. Journal of Membrane Science, 1994. **92**(2): p. 131.
20. Günther, J., C. Albasi, and C. Lafforgue, *Filtration characteristics of hollow fiber microfiltration membranes used in a specific double membrane bioreactor*. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 2009.
21. Wang, Y., Chen, F., Luo, G., Dai, Y., *Effect of random packing on shell-side flow and mass transfer in hollow fiber module described by normal distribution function*. Journal of Membrane Science, 2003. **216**(1-2): p. 81.
22. Rogers, J.D. and Long, R.L., *Modeling hollow fiber membrane contactors using film theory, Voronoi tessellations, and facilitation factors for systems with interface reactions*. Journal of Membrane Science, 1997. **134**(1): p. 1.
23. Happel, J., *Viscous flow relative to arrays of cylinders*. AIChE Journal, 1959. **5**(2): p. 174-177.
24. Happel, J. and H. Brenner, *Low Reynolds number hydrodynamics*. 1983. Medium: X; Size: Pages: 553.
25. Chang, S., Fane, A.G., and Vigneswaran, S., *Modeling and optimizing submerged hollow fiber membrane modules*. AIChE Journal, 2002. **48**(10): p. 2203-2212.
26. Beavers, G.S. and Joseph, D.D., *Boundary conditions at a naturally permeable wall*. Journal of Fluid Mechanics Digital Archive, 1967. **30**(01): p. 197-207.
27. Schmitz, Ph. and Prat, M., *3-D Laminar stationary flow over a porous surface with suction: Description at pore level*. AIChE Journal, 1995. **41**(10): p. 2212-2226.
28. Mendret, J., *Mise au point de méthodes de caractérisation du colmatage de membranes : application à la caractérisation in situ d'un dépôt particulaire en ultrafiltration frontale en lien avec les performances du procédé*. Thesis, INSA, Université de Toulouse, 2007.
29. Foley, G., *A review of factors affecting filter cake properties in dead-end microfiltration of microbial suspensions*. Journal of Membrane Science, 2006. **274**(1-2): p. 38.
30. Kincl, J., Dolecek, P., and J. Cakl, *Filtration model for hollow fiber membranes with compressible cake formation*. Desalination, 2009. **240**(1-3): p. 99.
31. Carroll, T., *The effect of cake and fibre properties on flux declines in hollow-fibre microfiltration membranes*. Journal of Membrane Science, 2001. **189**(2): p. 167.

Résumé :

Cette deuxième partie relative à l'approche numérique du fonctionnement du dispositif de microfiltration à fibres creuses comportait deux principaux objectifs :

- le premier était d'évaluer l'effet de la densité de fibres dans le module sur la répartition spatiale longitudinale du dépôt,
- le deuxième objectif était d'évaluer les différences de cette répartition du dépôt consécutives au sens de filtration : en mode interne/externe et en mode externe/interne.

La démarche suivie a consisté à intégrer un modèle d'écoulement simulant la formation d'un dépôt dans un canal à paroi poreuse de géométrie similaire à celle des fibres creuses retrouvées dans les modules utilisés.

Les profils longitudinaux des vitesses de filtration décrits comme hétérogènes dans l'article n°2, entraînent une répartition non uniforme du dépôt le long de la fibre. Pour de faibles compacités, le relatif éloignement des fibres n'entraîne pas d'augmentation de pression dans la partie fluide externe. Les profils non uniformes de vitesse de filtration le long de la fibre sont principalement la conséquence des pertes de charges dues à l'écoulement à l'intérieur de la fibre. Ainsi, le dépôt prend la forme des profils de vitesse de filtration et la garde durant la durée de filtration. L'écoulement n'est que très peu perturbé par la présence du dépôt et les zones de croissance préférentielle correspondent aux zones de fortes vitesses de filtration à $t=0$. Maintenant, si l'on se place à une forte compacité, le confinement des fibres entraîne une augmentation de pression dans la partie fluide externe induisant une forte variation de pertes de charges impliquant une répartition du dépôt le long de la fibre beaucoup plus inhomogène.

Chapitre V : Approche expérimentale.

V.1 Dynamique d'homogénéisation.

Afin d'estimer théoriquement le temps nécessaire à l'homogénéisation des solutés dans le système proposé, nous avons utilisé la généralisation du bilan de matière effectué sur chaque réservoir, valable pour les solutés capable de traverser la membrane et dans laquelle nous avons négligé le transfert par diffusion :

$$\frac{dc_A}{dt} = \frac{F}{V} (c_B - c_A) + r_A \quad \text{Équation V-1}$$

$$\frac{dc_B}{dt} = \frac{F}{V} (c_A - c_B) + r_B \quad \text{Équation V-2}$$

Pour un soluté donné, C_A et C_B représentent ses concentrations dans les réacteurs A et B respectivement ; r_A et r_B ses vitesses volumiques de réaction dans les deux réacteurs ; F est le débit sortant et entrant dans chacun des réacteurs et V est le volume de fluide dans chaque réacteurs ; Pour la suite le rapport F/V sera appelé taux de dilution D_n , par analogie avec les procédés de culture microbienne avec une alimentation continue. On suppose que le débit d'échange entre les réservoirs est constant, qu'il n'y a pas de variation du débit du à un colmatage, et que le volume de chaque réservoir est constant.

S'il il n'y a pas de réaction dans les réservoirs, le bilan de matière pour tout les solutés traversant la membrane est,

$$\frac{dc_A}{dt} = D_n (c_B - c_A) \quad \text{Équation V-3}$$

$$\frac{dc_B}{dt} = D_n (c_A - c_B) \quad \text{Équation V-4}$$

La solution de ce système d'équations, pour $c_{A(0)}$ et $c_{B(0)}$, est :

$$c_A(t) = \frac{c_{A0} + c_{B0}}{2} + \frac{c_{A0} - c_{B0}}{2} \exp(-2D_n t) \quad \text{Équation V-5}$$

$$c_B(t) = \frac{c_{A0} + c_{B0}}{2} - \frac{c_{A0} - c_{B0}}{2} \exp(-2D_n t) \quad \text{Équation V-6}$$

Pour évaluer la performance d'homogénéisation, nous avons utilisé un paramètre traduisant la différence entre l'écart initial entre les concentrations d'un soluté dans les deux réacteurs et l'écart des concentrations dans A et B pour un temps rapporté à l'écart initial,

$$\frac{(c_{A0} - c_{B0}) - (c_A - c_B)}{c_{A0} - c_{B0}} = 1 - \exp(-2D_n t) \quad \text{Équation V-7}$$

Ainsi, une valeur de 1 (ou 100 %) signifie qu'il n'existe pas de différence ($c_A = c_B$) et donc que les deux réacteurs sont totalement homogénéisés, tandis qu'une valeur de 0 signifie qu'il n'y a aucun mélange.

La Figure V-1 compare l'évolution du paramètre traduisant le pourcentage d'homogénéisation en fonction du temps pour une PTM de 0,4 bar et une PTM de 0,8 bar. Les symboles correspondent à des valeurs obtenues expérimentalement, les barres d'erreur représentent l'écart type obtenu sur une répétition de 3 essais. La ligne continue représente les résultats obtenus avec le modèle décrit ci-dessus en prenant F le débit entrant et sortant à l'eau osmosée à 0,4 bar et 0,8 bar.

Le modèle théorique traduit correctement l'évolution du temps d'homogénéisation obtenu expérimentalement. Ce temps d'homogénéisation est inférieur lorsque l'on utilise une pression transmembranaire de 0,8 bar (140 sec) que pour une pression de 0,4 bar (200 sec). Les changements dans l'environnement sont très rapides par rapport au mécanisme de réponse, les variations ne modifieront pas le comportement du micro-organisme.

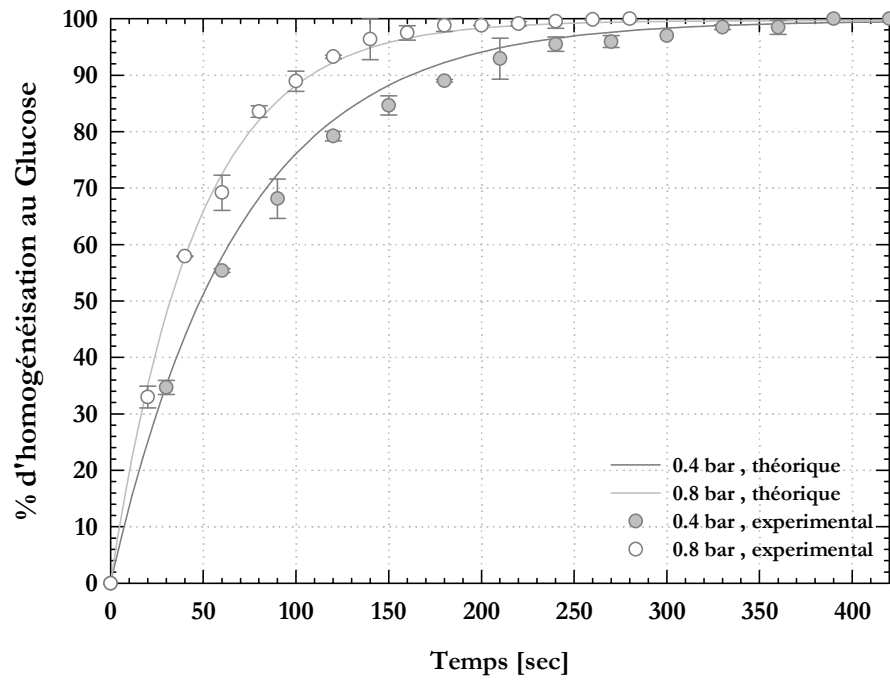


Figure V-1. Evolution du pourcentage d'homogénéisation en fonction du temps pour le glucose.

V.2 Problématique et objectif de l'étude.

L'objectif de ce chapitre est de caractériser l'impact des conditions opératoires, et plus spécifiquement de la PTM imposée, de la compacité du module de filtration et du sens de filtration sur les performances de filtration

Une attention particulière sera également donnée à l'effet des composants du milieu filtré sur le colmatage et à son impact sur l'homogénéisation du milieu dans chacun des réacteurs.

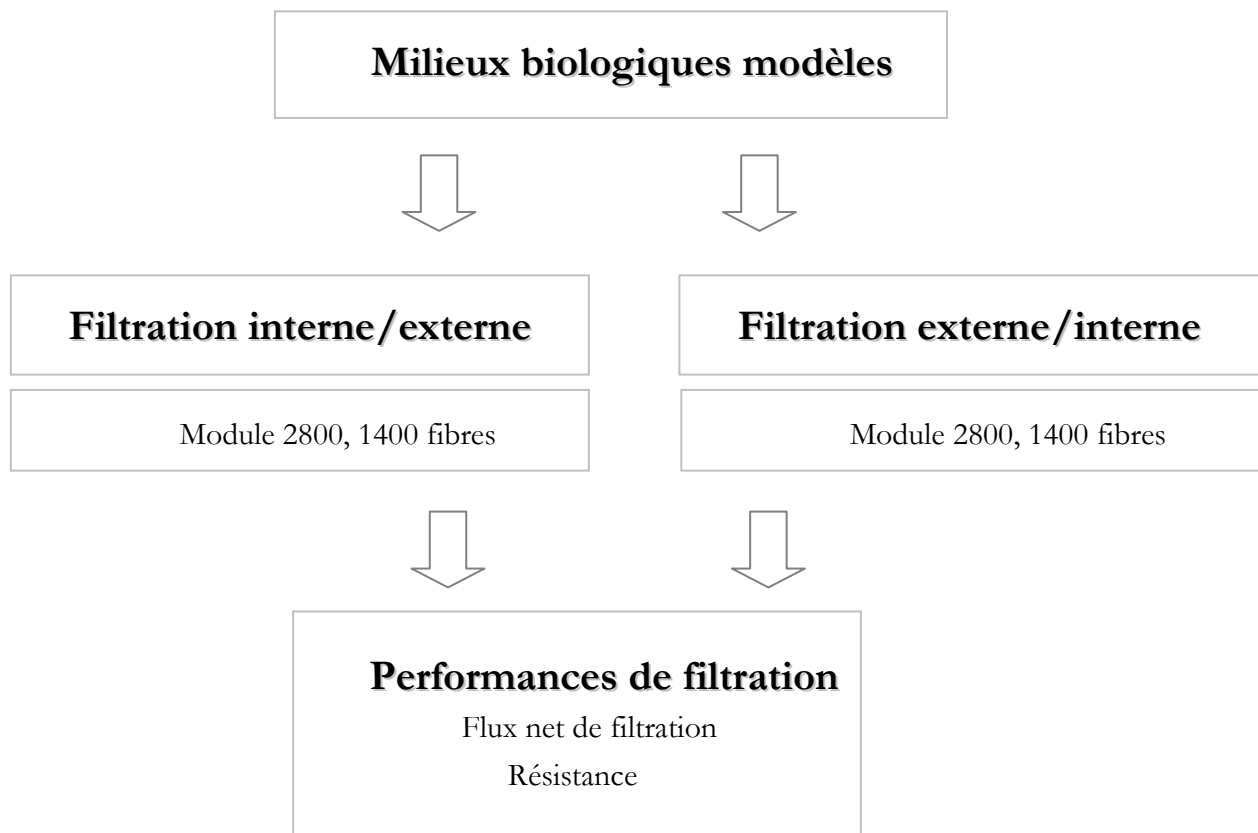


Figure V-2. Récapitulatif synthétique des expériences réalisées dans ce chapitre.

La stratégie conduisant au choix des expériences exposées dans ce chapitre repose sur trois éléments :

- d'une part sur une simplification et une modélisation des milieux biologiques retrouvés dans les fermentations de cultures mixtes,

- d'autre part sur l'étude systématique du sens de filtration imposé à ces milieux.
- Finalement l'influence de la compacité des fibres dans le module, caractéristique majeure de ces configurations à également été analysée.

Ainsi, au travers d'une approche expérimentale, nous essaierons de répondre aux questions suivantes :

- 1) Quelles sont les performances de filtration pour différentes PTM en mode de filtration Interne/Externe ? Quelles sont les performances de mélange dans le cas d'un composé d'intérêt potentiellement colmatant ? Ces questions font l'objet de l'article n°1 *Filtration characteristics of a Hollow fiber microfiltration membrane used in a specific membrane bioreactor*, publié en 2009 dans le journal *Chemical Engineering and Processing : Process Intensification*
- 2) Quel est l'impact du sens de filtration sur les performances du pilote pour un fluide modèle simulant un milieu de fermentation simple avec micro organismes?
- 3) Quelle compacité de module semble la plus performante pour le fluide modèle étudié ? et dans quel sens de filtration ?

V.3 Performances de filtration lors de l'utilisation du modules 2800 fibres.

V.3.1 Filtration characteristics of hollow fiber microfiltration membranes used in a specific double membrane bioreactor.



Filtration characteristics of hollow fiber microfiltration membranes used in a specific double membrane bioreactor

Jan Günther^{a,b}, Claire Albasi^a, Christine Lafforgue^{b,*}

^a Laboratoire de Génie Chimique, UMR CNRS 5503, 5 rue Paulin Talabot, BP 1301, 31106 Toulouse cedex 01, France

^b Laboratoire d'ingénierie des Systèmes Biologiques et des Procédés, UMR INSA CNRS 5504, UMR INSA INRA 792, 135 avenue de Rangueil, 31077 Toulouse cedex 04, France

ARTICLE INFO

Article history:

Received 30 November 2008

Received in revised form 30 March 2009

Accepted 12 May 2009

Available online 19 May 2009

Keywords:

Membrane

Fouling

Microfiltration

Hollow fiber

Backpulse

ABSTRACT

The performance of the microfiltration in a specifically designed membrane bioreactor operating under various transmembrane pressures with periodic backwashing was investigated for model media. These media were representative of some usual components of a fermentation medium: BSA solution (2 g L^{-1}), yeast suspension (8 g L^{-1} , dry mass) and a mixture of BSA/yeast ($2 \text{ g L}^{-1}/8 \text{ g L}^{-1}$). In this system, the separation was provided by a $0.1 \mu\text{m}$ polysulfone hollow fiber membrane. The net permeate fluxes observed for yeast/BSA mixture were proportional to the transmembrane pressure applied (ΔP) but were less than those obtained with water osmosis, showing that, in spite of the periodic backwash, a small amount of irreversible fouling remained. This fouling can be assumed to be due to internal fouling by protein and/or external fouling by a residual yeast cake. Moreover, the net permeate flux obtained with the yeast/BSA mixture was higher than that obtained with the BSA alone, showing that a thin yeast cake probably acted as a primary filtration layer that could protect the polysulfone membrane against protein fouling. These experiments enable operating recommendations to be made for the use of this specific bioreactor concerning the transmembrane pressure value and the possible addition of inert particles.

© 2009 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

Most microbiological processes use microbial consortia, especially in agro-food processes [1,2] and biological wastewater treatment [3,4]. The performance of these processes depends strongly on phenomena of interaction among the microorganisms and numerous works have tried to analyze the complex mechanisms of interactions among the microbial species involved [5,6]. However, the routine procedures used for tracking individual strains are generally time consuming and costly. In many cases, these procedures involve the isolation of the microorganisms and their growth in Petri dishes (for example) with a subsequent macroscopic identification and count of the microbial colonies, or fastidious microscopic observation. Frequently this kind of identification is incomplete and has to be followed by a second procedure.

The biomass concentration of each participating species in microbial consortia is the key parameter for the quantitative study of the interactions. Numerous works have shown the possibility of carrying out studies of mixed-population interactions. The basic idea comes from New Brunswick Scientific (Edison, NJ) with a system called EcoloGen [7], in which different strains or species are cultivated in separate chambers. Each culture chamber communi-

cates with a central chamber through a flat membrane. Solutes, to which the membranes are permeable, diffuse between the central and the culture chambers and so all the cultivated species are brought into contact with all the dissolved substances. Mass transfer by diffusion resulting in a slow homogenization of the fluids between the chambers appears to be a major limitation to this approach. Petchanker and Ercoli [8] discussed the possibility of building a membrane reactor where the exchanges between the culture chambers were achieved by diffusion and convection (filtration) of the medium. However, their approach was theoretical and they only presented a mathematical model and a computer simulation of a microbial interaction.

This article presents a specific bioreactor previously designed to study microbial interactions [9–11]. In this process, the microbial species in two tanks are physically separated by a microfiltration membrane.

In order to give to the microorganisms a molecular environment in each compartment similar to the one that would be obtained if the microbial cells were cultivated in the same reactor, two criteria have to be considered: (i) the flow rates between compartments have to be sufficient with respect to the microbial kinetics and (ii) all the molecular compounds of the medium that have an effect on the microorganism behavior must pass through the membrane [9,10]. Three papers have shown the suitability of the double membrane bioreactor in a case of a protein-mediated killer interaction [10], even confronted with an existing mathematical model

* Corresponding author.

E-mail address: christine.lafforgue@insa-toulouse.fr (C. Lafforgue).

describing the population dynamics in the mixed killer/sensitive cultures [12,18] but no systematic study has been done on fouling and fouling effects on transmission.

Microfiltration membranes are widely used for carrying out solid–liquid size separation because of their technical advantages such as gentle conditions, no phase change, and therefore low energy expenditure, absence of additives, and compact design. However, due to membrane fouling, their potential has not been fully realized. One way to minimize fouling is to use an in situ cleaning technique such as backpulsing. Backpulsing involves a high-frequency reversal of the permeate flow by applying pressure on the permeate side. During the backpulse, a portion of the external cake may be lifted off the membrane and swept away by the inverse flow. Internal foulants may also be partially or completely removed. Backpulsing has shown considerable promise for a variety of microbiological applications. Kuberkar and Davis [13] show a total permeate improvement between 20 and 90% with backpulsing for a mix of BSA and yeast (*Saccharomyces cerevisiae*). Redkar and Davis [14] studied the backpulsing process for microfiltration of washed yeast suspensions. Under optimum conditions, flux enhancement of approximately 40-fold was observed.

One of the main technological advantages of this double membrane bioreactor is that the rapid flow inversion keeps a similar environment in the two reactors. The flow inversion creates an auto-cleaning process (backpulse). However, it can be assumed that the reversibility of the cake fouling on the membrane depends not only on the operating conditions (volume exchanged and compression level) but also on the specific properties of the culture medium.

Backpulsing has been applied to numerous multicomponent systems, such as fermentation broth [15,16], but no systematic studies have been done where the main usual components of the microbial culture media have also been individually studied under similar processing conditions.

Leading on the knowledge about conventional membrane processes, the aim of this work is to examine, in this very specific reactor, the membrane fouling and protein transmission during microfiltration of protein and protein–cell mixture with a high frequency of backpulsing, in order to develop a rational optimization of the operating conditions of this specific process.

2. Theoretical considerations

2.1. Device concept

A scheme of the bioreactor concept is shown in Fig. 1. It is composed of two fermentors interconnected by a hollow fiber membrane module, which is immersed in the liquid of one of the fermentors. Liquid flow and mixing are induced by applying gas compression alternately to the headspace of each of the reactors. Compression is obtained by the admission of compressed filter-sterilized air through electro-valves controlled by the measurement of liquid levels in the reactors (conductivity probes). The resulting filtration swing allows the same mean liquid volume to be maintained in both tanks. An extra benefit of this swing is the limitation of fouling thanks to the resulting backpulsing.

In the system configuration used here, a solenoid valve allowed a temporization of the opening of the valves based on the signals of the liquid level sensors. The resulting parts of the cycle are labeled in Fig. 2.

The permeate flow and air supply lines were switched by electro-valves EV1 and EV2 which were controlled by the level probe in each tank. Pulsing was carried out at a frequency depending on membrane fouling but with a fixed filtration volume. Each step of the cycle (filtration and backwash) is described as follow: In the reactor A, EV2_a was opened and EV1_a was closed for 4 s before

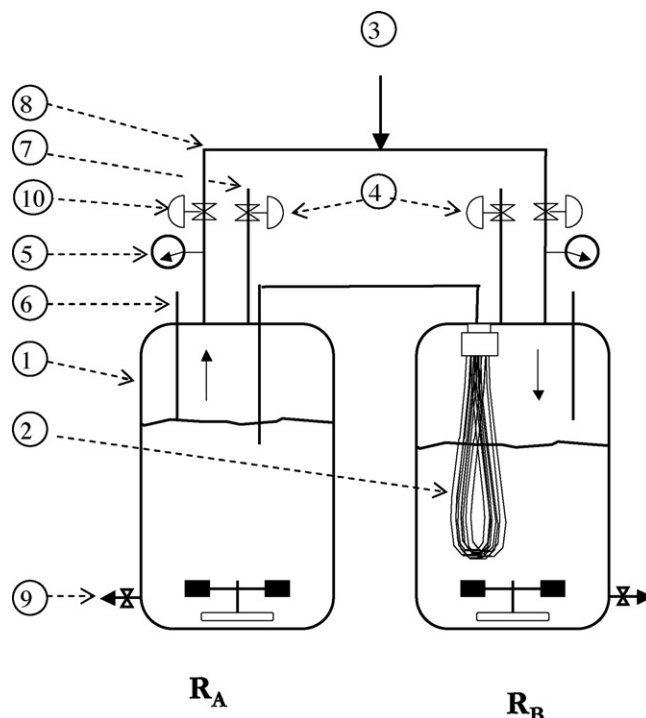


Fig. 1. Schematic design of the double-membrane bioreactor: (1) biological reactor, (2) membrane, (3) compressed air, (4) electro-valve EV1, (5) pressure gauge, (6) level gauge, (7) gas outlet, (8) air inlet, (9) sampling outlet, and (10) electro-valve EV2.

the application of the pressure. In parallel EV2_b and EV1_b of the reactor B are closed. This step named temporization ensures that pressure applied will be at the desired value and not in a transient state (Fig. 2b). Secondly, EV1_b was opened and the suspension is filtered through the microfiltration membrane to reach the level imposed by the level probe in the reactor B. When the volume of filtration fixed by the level probe was reached, EV1_b EV1_a and EV2_b were closed and EV2_b was opened (temporization step). Finally EV1_a was opened to begin the backwash step.

2.2. Filtration

• Forward step

A two-step process is considered here, comprising an inner to outer filtration stage followed by an outer to inner backwash filtration step, where the filtrate is used to backwash through the membrane to remove the deposit. During the filtration phase the filtrate flow rate is given by conventional filtration theory based on Darcy's law. The whole flow resistance can be assumed to be composed of two parts: the fouling filtration resistance R_f and the resistance of the membrane such that R_m . The filtration flow rate is then given by

$$J = \frac{\Delta P}{\mu(R_m + R_f)} \quad (2.1)$$

The fouling filtration resistance R_f can be expressed as

$$R_f = R_r + R_{ir} \quad (2.2)$$

where R_r is the resistance caused by reversible fouling and the concentration polarization and R_{ir} is the resistance caused by irreversible fouling.

• Backwash step

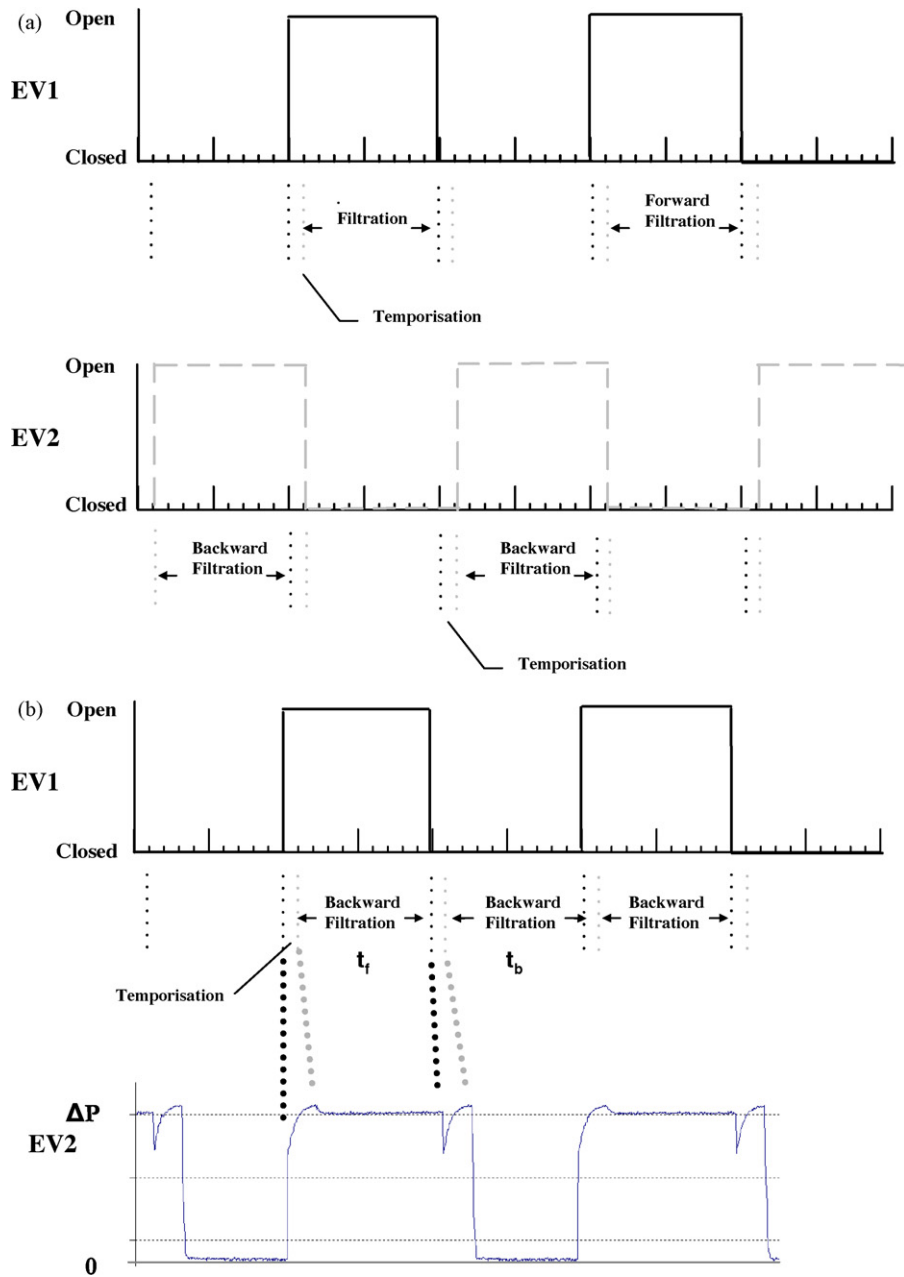


Fig. 2. (a) Control signal sent to valves (EV1 and EV2) to produce the forward and backward filtration of the cycle. (b) Control signal sent to valve EV1 to produce the forward filtration of the cycle and associated pressure acquisition curve in reactor A.

The time required for the backward filtration depends on the volume of filtrate selected (fixed) and the backwash flow rate

$$t_b = \frac{V_b}{Q_b} = \frac{V_b}{J_b} S \quad (2.3)$$

where Q_b is determined by the pressure applied during the backwash step ΔP_b and the resistance of the membrane:

$$Q_b = \frac{\Delta P_b}{\mu R_m} S \quad (2.4)$$

The pressure used for the backwash can be defined in terms of the pressure used for filtration:

$$\Delta P_b = \alpha \Delta P \quad (2.5)$$

In the case of the present work $\alpha = 1$.

For the overall process involving the two steps of forward and backward filtration, the total amount of filtrate produced is $V - V_b$

and the time to produce this amount is $t + t_b$, where V is the amount of filtrate produced in time t devoted to the forward filtration step and V_b is the amount of filtrate used in backwash in the time t_b . Then the productivity of the membrane system using a periodic backwash to remove the reversible component of the foulants layer [15,17,14,25] is given by

$$Q_{net} = \frac{V - V_b}{t + t_b} \quad (2.6)$$

$$Q_{net} \text{ (m}^3 \text{ s}^{-1}\text{)} = \frac{Q_f t - Q_b t_b}{t + t_b} \quad (2.7)$$

It should be pointed out that these last two equations could not be used in the atypical configuration described in this work and represents general case configurations when $V \neq V_b$.

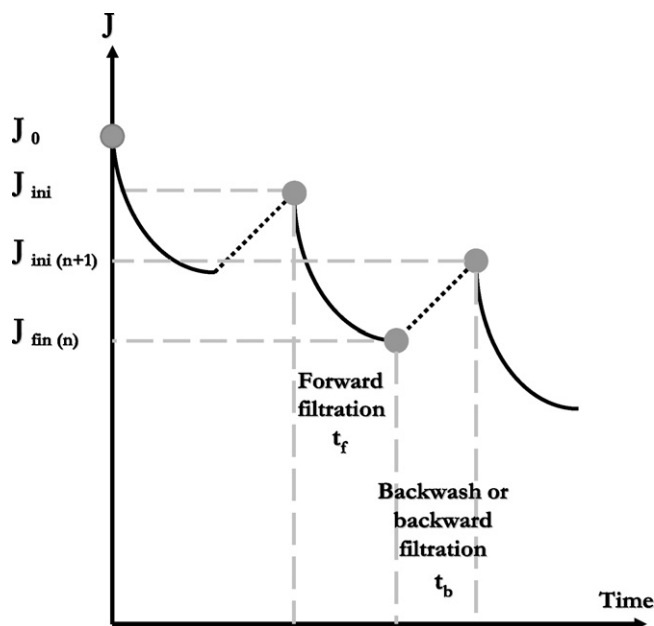


Fig. 3. Schematic representation of flux decline for each step of filtration with corresponding filtration time.

Nevertheless, the net flux is expressed as

$$J_{net} \text{ (L h}^{-1} \text{ m}^{-2}\text{)} = \frac{\left(\int_0^{t_f} J_f(t) dt - \int_{t_f}^{t_f+t_b} J_b(t) dt \right)}{t_f + t_b} \quad (2.8)$$

where J_{net} is the net permeate flux of the microfiltration membrane operating with periodic backpulse corresponding to the average permeate flux per cycle; J_f is the permeate forward flux ($\text{L h}^{-1} \text{ m}^{-2}$), J_b is the backpulse flow rate ($\text{L h}^{-1} \text{ m}^{-2}$), t_f and t_b are the duration of respectively the forward filtration and backward filtration time (h) (Fig. 3).

3. Materials and methods

3.1. Materials

3.1.1. Yeast and BSA solutions

Yeast suspensions and BSA solutions were prepared by adding washed yeast (*S. cerevisiae*, commercially available Lesaffre's active dry yeast) and BSA (Sigma, heat shocked fractionate, fraction V powder, batch #066K0708) in appropriate concentrations to buffer. Phosphate buffer saline (PBS) buffer was used as the suspending solution. The buffer solution (pH 7.1) was prepared fresh for each experiment by mixing 80 g of NaCl (Panreac, batch #0000080666), 2 g KCl (Prolabo, batch #M065), 14.4 g of Na_2HPO_4 (VWR, batch #06J160009), and 2.4 g of KH_2PO_4 (VWR, batch #0503464) in 10 L of osmosis water.

Before use, the yeast suspension was hydrated in PBS and washed by centrifugation (Beckman, model Avanti 20 g) for 10 min at 5000 rpm. The supernatant was then discarded and the pellet was suspended in PBS. The washing procedure was repeated three times for each suspension.

Protein solution was prepared by dissolving 4 g of BSA powder (heat shocked fractionate fraction V) in 2 L of osmosis water. As this powder is produced by a process that involves heating and spray drying, some of the protein content is denatured and the solution can present some aggregates.

In order to check the homogeneity of the fluid models, laser granulometry and dynamic light scattering (DLS) measurements were performed on the yeast suspensions and on the protein solu-

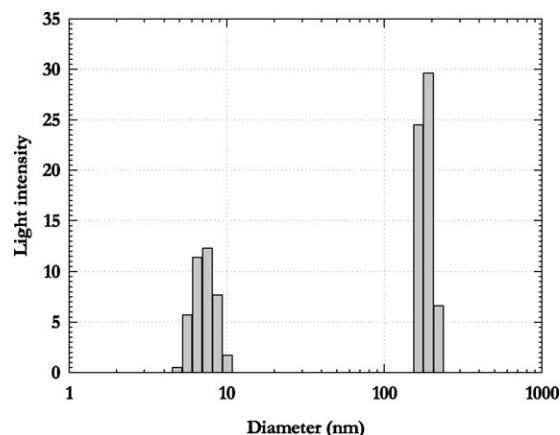


Fig. 4. Typical data of apparent particle diameter in protein solution (2 g L^{-1} of PBS) using dynamic light scattering. DLS measurement angle 60° .

tion using a Malvern Mastersizer 2000 and a Malvern NanoS system, respectively. Figs. 4 and 5 provide information on the colloidal protein size distribution and the yeast apparent particle diameter, which appears to be bimodal for the BSA solution with two groups of particles corresponding to mean apparent diameters of 6 and 200 nm. The $\sim 6 \text{ nm}$ mean diameter may represent the size of BSA monomer, whereas the characteristic diameters of 200 nm are, most likely, protein aggregates. The DLS measurements could show the presence of different classes of particles but not their proportions. The light intensity depends on the size of the particles.

3.1.2. Bioreactor device and membranes

The current device is composed of two 2-L fermentors (Setric Genie Industriel, Toulouse, France) interconnected by an hollow fiber membrane module from Polymem (Toulouse, France) with a specified design immersed in one of the fermentors.

Fibers were U-shaped and were held together with an epoxy-resin at their upper part. The upper part of the bundle was contained in a stainless steel punched receptacle and the filtering part immersed freely in the liquid. Fibers were made of polysulfone and had a nominal pore diameter of $0.1 \mu\text{m}$, while the internal and external diameters were 0.25 and 0.43 mm, respectively. Corresponding maximal filtration areas were 0.3 and 0.45 m^2 , respectively.

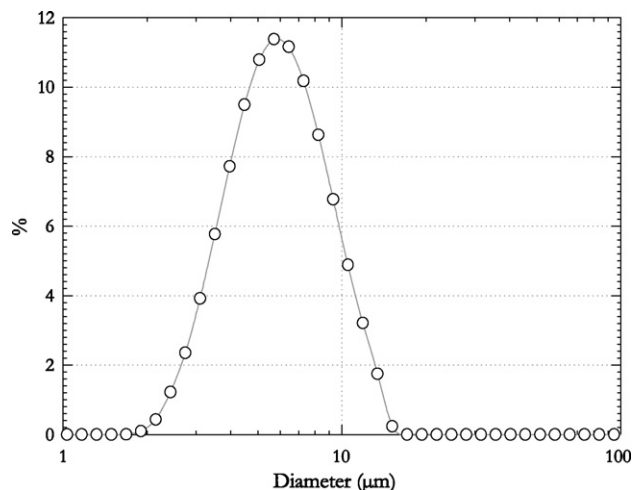


Fig. 5. Typical data of apparent particle diameter in yeast suspensions (8 g L^{-1} of PBS) using laser granulometry.

Each fermentor is connected to an acquisition card which can control the operating parameters (stirring rate, pH, temperature, partial pressure of dissolved oxygen).

3.2. Methods

All experiments were performed at $T = 25^\circ\text{C}$ and repeated twice for each condition. An average transmembrane pressure drop was maintained for both forward and backward filtration with the permeate side open to the atmosphere during each cycle. Each run began by filtering osmosis water and buffer solution through the clean membrane until the permeate flux was stable (usually after a period of 10 min). At this point, a switch was made to the different BSA, BSA/yeast and yeast suspensions. A sample of yeast suspension was withdrawn from the reactor and centrifuged three times at 5000 rpm with a PBS buffer wash between each centrifugation. Biomass concentration was then estimated by cell dry mass determination after filtration (0.2 μm pore size filter) and drying to constant weight under partial vacuum (24 h, 200 mmHg, 60°C). The filter masses were measured once again after 48 h to check their stability. All yeast concentrations were expressed as dry cell mass (DCM) of yeast (after washing) per unit volume of solution.

The protein concentration was measured through UV light absorbance at a wavelength of 595 nm using the micro-Bradford method (Biorad) and a Synergy HT spectrophotometer. Each sample was diluted to 1/10 to come within the measuring range (10–1000 $\mu\text{g mL}^{-1}$) and tested in triplicate. The accuracy and precision of this protein assay is entirely dependent on the accuracy and precision of the pipetting and was evaluated at better than 1%.

Filtration experiments were carried out for BSA, yeast, and mixtures of BSA and yeast as follows:

- The suspensions and/or mixtures were placed in reactor A (RA—Fig. 1) and the phosphate buffer placed in reactor B (RB—Fig. 1).
- The hollow microfiltration module was placed in reactor B.
- Each cycle was a forward filtration (from the internal face of the hollow fiber microfiltration membrane module to the external face) followed by a backward filtration (from the external face of the hollow fiber microfiltration membrane module to the internal face).
- The experiments were then run for a period of 3600 s.

The values of the key parameters are given in Table 1.

Eqs. (3.1) and (3.2) shows the way to determine respectively the forward and backward permeate flux in this process:

$$J_f = \frac{V_f}{t_f \times S_{fi}} \quad (3.1)$$

Table 1

Summary of parameter values used for the experiments.

Membrane characteristics	
Hollow fiber (polysulfone) I.D. 0.23 mm, $L = 15$ cm, Nom. Pore size: 0.1 μm	
Feed conditions	
BSA in PBS	
Concentration: 2 g L^{-1}	
pH 7.1, $T = 25^\circ\text{C}$, $\Delta P = 0.4$ bar	
Yeast in PBS	
Concentration: 8 g L^{-1}	
pH 7.1, $T = 25^\circ\text{C}$, $\Delta P = 0.4$ bar	
Mix yeast–BSA in PBS	
Concentration: BSA = 2 g L^{-1} , yeast = 8 g L^{-1}	
pH 7.1, $T = 25^\circ\text{C}$, $\Delta P = 0.2, 0.4, 0.6, 0.8$ bar	
Process operating parameters	
Filtration transmembrane pressure (forward and backward): 0.2, 0.4, 0.6, 0.8 bar	
Volume of filtration: 400 mL	
Agitation: 300 rpm	

$$J_b = \frac{V_f}{t_b \times S_{fe}} \quad (3.2)$$

with V_f the selected filtrate volume (400 mL) determined according to previous studies [10], t_f and t_b are respectively the forward filtration time the backward filtration time. These last two parameters are recorded and included in Eqs. (3.1) and (3.2) to calculate the forward and backward fluxes. S_{fi} is the total inner filtration surface of the hollow fiber microfiltration module (0.3 m^2). As it could be observed in Fig. 1 the module is partially immersed and a small part of the outer filtration surface is not immersed. Experiments have been done to evaluate the flux loss between up level position (before filtration) and down level position (after filtration of V_f). A small difference inferior to 10% have been observed (data not shown). Accordingly, the outer filtration surface S_{fe} was evaluated at 0.4 m^2 .

As previously mentioned, the net permeate flux is then calculated as the time average of the permeate forward flux; J_f and backward permeate flux J_b :

$$J_{net} (\text{L h}^{-1} \text{m}^{-2}) = \frac{\left(\int_0^{t_f} J_f(t) dt - \int_{t_f}^{t_f+t_b} J_b(t) dt \right)}{t_f + t_b}$$

4. Results and discussion

The purpose of this paper was to study the joint effect of transmembrane pressure and fluid characteristics on process performances in order to deduce pilot procedure recommendations for cases of complex fluid separation.

4.1. Effect of transmembrane pressure on filtration characteristic

4.1.1. Net flux J_{net}

The aim of this part was to examine the performance of the atypical filtration mode previously described, in terms of net flux permeate during filtration of model mixtures of BSA and yeast and to try to link the effects of transmembrane pressure and fluid characteristics. The influence on the net flux decline determined thanks to Eqs. (3.1), (3.2) and (2.8) due to each operating parameter was analyzed separately by studying the effect of transmembrane pressure ΔP on the net permeate flux for the 2 g L^{-1} protein solution filtered together with 8 g L^{-1} yeast (Fig. 6). Each dot in Fig. 6 is the net flux J_{net} , i.e. the productivity for one cycle, pulse and back.

The net filtration flux behaves as conventional flux, and it declined rapidly within the first 600 s for transmembrane pressures

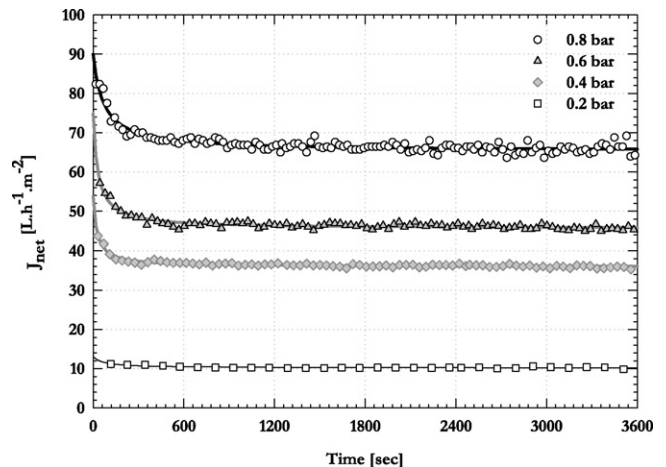


Fig. 6. Net permeate flux obtained for a BSA/yeast mixture (2 g L^{-1} BSA, 8 g L^{-1} yeast) for transmembrane pressures of 0.2, 0.4, 0.6 and 0.8 bar.

of 0.4, 0.6 and 0.8 bar. No flux loss was observed for a ΔP of 0.2 bar. Further decline was quite small, and the flux value after 3600 s could be considered as the steady-state value, J_{ssnet} . It was noted first that the difference between each of the plots of the graph, i.e. the difference between the initial net permeate flux at the beginning of a series of filtration cycles and the initial net permeate flux of each subsequent filtration cycle, after a backward filtration, represented the net flux reduction due to two kinds of fouling. Indeed the volume of filtrate during the backwash step is fixed and has been determined in previous studies by Salgado [10] to be optimal for a minimal mixing time. But it may happen that cleaning is not complete and, in particular for hollow fiber microfiltration membrane, internal and residual particulate fouling can progressively build up to affect filtration performances. This latter kind of fouling can be present at the membrane level at the end of backwash filtration stage but could not be considered as irreversible fouling in a hydraulic point of view [23]. The resistance of the membrane R_m will increase from cycle to cycle due to internal fouling and, consequently, the time t_b will also increase, decreasing proportionally the backwash filtration flux then promoting residual particulate fouling, reducing the efficiency of the backwash. Moreover the backward filtration should provide a fouling too, given that protein must be mixed in the entire volume of the two tanks as we will discussed later.

In conventional microfiltration, two regions could be defined in the correlation of ΔP and steady-state flux. In the first region, the flux depended on ΔP and is determined by membrane properties. For the second region, the ΔP -independent flux could be explained as the balance between the flux and the lift velocity (back-transport velocity) generated by the shear stress due to the flow velocity gradient over the membrane. In this describe operating mode, Fig. 7 shows the effect of the transmembrane pressure ΔP on the steady-state net flux (J_{ssnet}) for the BSA/yeast mixture and for osmosis water. If there was no fouling, i.e. the backward filtration of each cycle removed all the foulants deposited on and/or in the membrane during the forward filtration, the steady-state net permeate flux should be close to that observed with osmosis (clear) water. The steady-state net permeate flux observed for the mixture of yeast and protein was proportional to transmembrane pressure ΔP but lower than that observed with osmosis water. A small amount of remaining foulants (yeast and protein aggregate for residual particulate fouling and/or protein for internal fouling) could be responsible for this. Due to the very short period of filtration, the conditions describe here are unsteady and an assumption

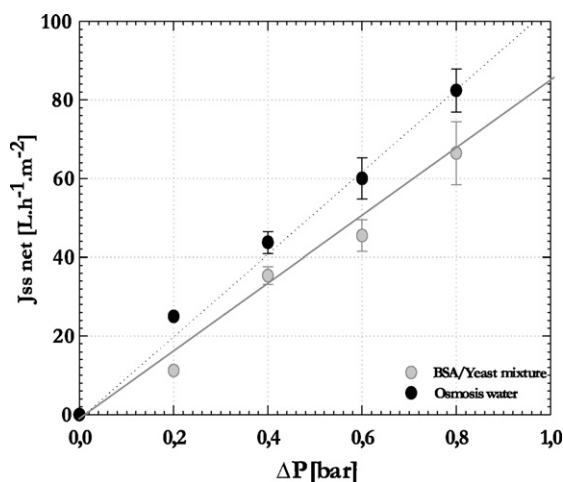


Fig. 7. Effect of transmembrane pressure, ΔP , on steady-state flux, J_{ssnet} , obtained for a BSA/yeast mixture (2 g L^{-1} BSA, 8 g L^{-1} yeast) for pressures of 0.2, 0.4, 0.6 and 0.8 bar.

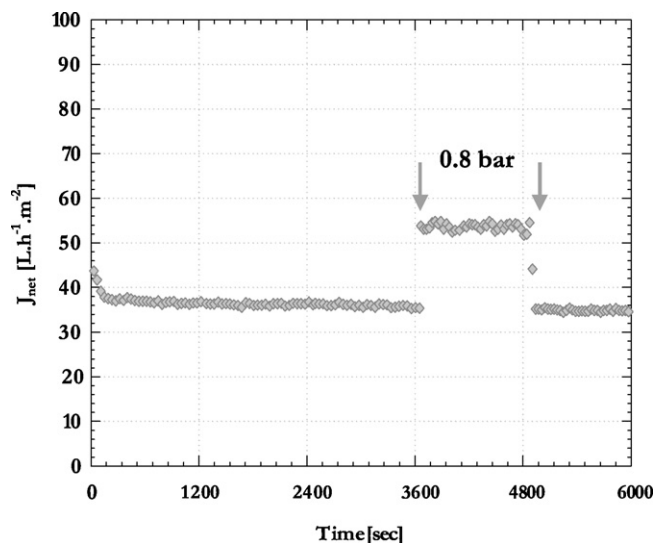


Fig. 8. Net permeate flux obtained for a BSA/yeast mixture (2 g L^{-1} BSA, 8 g L^{-1} yeast) for a variable pressure of 0.4 and 0.8 bar.

on the compressibility of the fouling cake would be premature. Nevertheless, in terms of process performance, this discrepancy is small and the linearity between ΔP and J_{ssnet} is conserved. To go deeper into this observation, the transmembrane pressure was doubled after 3600 s of experiment for 1200 s then was returned to the initial ΔP value. Fig. 8 shows that the net flux after this period was the same as before but the net flux at 0.8 bar was below the values recorded for an entire experiment performed at 0.8 bar. In this atypical filtration mode, the irreversible fouling due to internal fouling by protein and/or external fouling by a yeast cake is a small proportion of the fouling. Another phenomenon could occur and explain the latter observation. If any, construction of the fouling cake is known to be depending on the transmembrane pressure applied [26]. This could explain the differences between the net flux for an experiment at 0.8 bar from the beginning to the end and a short augmentation in the ΔP after a period at a lower pressure on a cake still built up under other pressure conditions.

4.1.2. Protein transmission

As discussed below, in this bioreactor all the molecular compounds of the medium that have an effect on the microorganism's behavior must not be retained by the membrane [9,10] and protein (BSA) was chosen to evaluate the rate of homogenization between the compartments. It should be pointed out that the values obtained at 3600 s in reactor A, added to those obtained in reactor B do not exactly match the values at $t=0$ (Fig. 10). The estimation of these concentration values takes into account both the retention by the membrane and other protein losses such as those due to forward filtration and deposition on the pilot surfaces. Nevertheless, as shown in Fig. 9, the overall homogenization rate was reached at 240 s for each ΔP applied to the system. The feed concentration in each reactor did not fall notably thereafter for the remaining duration of the experiment. These observations are consistent with the literature [21] for dead end filtration as well as cross flow filtration [20], where protein rejection is below 15% although a fouling cake is present.

In this first part, the effect of the transmembrane pressure on the net flux decline for a mixture of yeast and protein has been studied. It points out that very little fouling occurs even when a long backward filtration occurs during each cycle, and this cake has a weak/negligible effect on protein transmission under all the conditions checked.

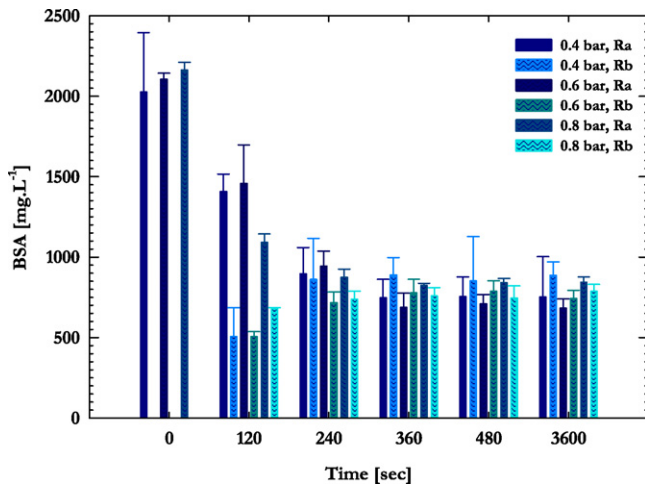


Fig. 9. Amount of protein vs. time in each tank for 0.4, 0.6 and 0.8 bar.

4.2. Effect of fluid characteristics on filtration performance

4.2.1. Net flux J_{net}

The effect of operating conditions on the net flux decline for a mixture of yeast and protein demonstrated that fouling was slight even when a long backward filtration was applied during each cycle. The influences of fluid characteristics were then evaluated for a fixed operating condition by studying the effect proper to each of the components of the BSA/yeast mixture used.

Fig. 10 shows the net flux evolution over a filtration period of 3600 s for a solution of BSA (2 g L^{-1}), a suspension of yeast (8 g L^{-1}), and a mixture of BSA/yeast at a ΔP of 0.4 bar.

For the yeast suspension, the flux declined rapidly within the first 600 s and then seemed to reach a steady state with $J_{ssnet} = 36 \text{ L h}^{-1} \text{ m}^{-2}$. Since yeast cells are much larger ($7 \mu\text{m}$) than the membrane pores ($0.1 \mu\text{m}$) they can form an external cake on top of the membrane. For every cycle of forward/backward filtration, the backpulse can be expected to cause the elimination of much of the external cake. The reverse permeate flow during each cycle lifts the cake off the membrane by applying hydrodynamic viscous drag which is resisted by the adhesive force. Two kinds of fouling cakes can be distinguished in the literature [13]: mobile or loose cake and adhesive/compact cake. The backward filtration is expected to clean the membrane for the first kind of cake and the results shown in Fig. 11 agree with this assumption. The flux lost is just 14.3% com-

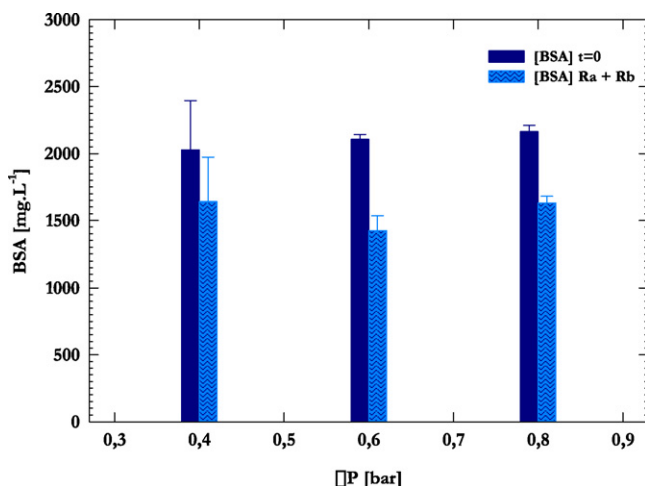


Fig. 10. Amount of protein at $t=0$ s in Ra and at $t=3600$ s for Ra + Rb.

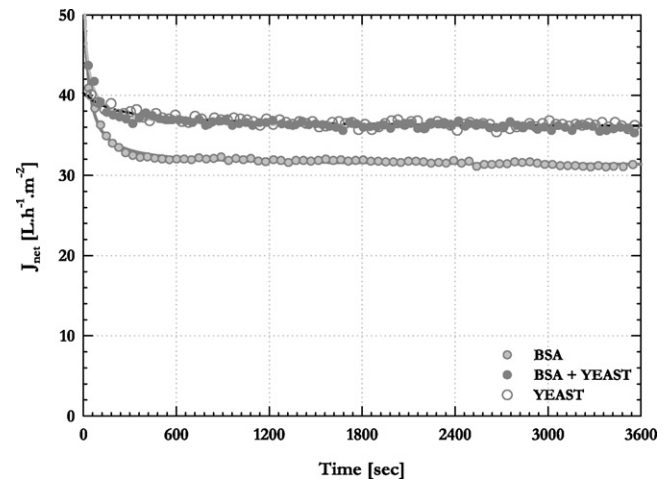


Fig. 11. Net permeate flux for mixture of 2 g L^{-1} of BSA and 8 g L^{-1} of yeast compared with a solution of BSA and a suspension of yeast (0.4 bar).

pared to J_{ssnet} at $t=0$ (Table 2) and the recovery of the permeability after a cycle of washing with osmosis water is more than 90%.

With the BSA solution, the net flux decline was greater and $J_{ssnet} = 31.8 \text{ L h}^{-1} \text{ m}^{-2}$ after a period of 3600 s. Many authors have shown that the main mechanisms involved in the primary BSA/protein fouling come from aggregates, which block pores and serve as nucleation sites for the deposition of additional proteins [13,19,20]. Backpulse during each cycle of filtration is able to remove a small portion of foulants, including aggregates and BSA monomer clogged inside the pores. Nevertheless, in terms of performance, for a high protein concentration compared to values found in the literature [19,22], the net flux decline is just 22.5% (Table 2).

Güell et al. showed that protein fouling of a microfiltration membrane could be reduced by forming a thin cake layer of yeast on the membrane surface, either during or before protein filtration [19]. One of their observations was a significantly higher flux in the presence of yeast cake than in its absence. Figs. 11 and 12 respectively show the resulting fluxes in the cases of a BSA/yeast mixture and a plot of a prefiltered yeast suspension before addition of BSA versus time, in the same operating conditions as described above. Clearly, for the BSA/yeast mixture, the net permeate flux is higher than for BSA alone and similar to that with yeast alone. (The J_{ssnet} after a period of 3600 s is $35 \text{ L h}^{-1} \text{ m}^{-2}$.) According to the literature [19,13], when yeast cells are present in suspension in the feed mixture, the net flux decline is smaller. In Fig. 12, no significant net flux decline was observed after the addition of BSA. Small amounts of yeast present on the membrane surface produced a dynamic layer on the top of the membrane which avoided direct clogging of the membrane porous material by the protein aggregates involved in the nucleation and additional adsorption of protein monomer.

Table 2

Initial flux with osmosis water (J_{onet} , $\text{L h}^{-1} \text{ m}^{-2}$) on clean membrane, steady-state net permeate flux J_{ssnet} ($\text{L h}^{-1} \text{ m}^{-2}$), percentage of flux lost (referred to initial flux $t=0$) and irreversible percentage loss (referred to initial flux with osmosis water) for $\Delta P=0.4$ bar.

	J_{onet}	J_{ssnet}	% lost	J_{net} after water cleaning	% irreversible
Osmotic water	45 ± 1	45 ± 1	0	45 ± 1	0
Yeast	42.8 ± 1	36 ± 1	15.9	40 ± 1	6.5
BSA	42.8 ± 1	31.8 ± 1	25.7	38 ± 1	11.2
BSA/yeast	43.4 ± 1	35 ± 1	19.3	40 ± 1	7.8

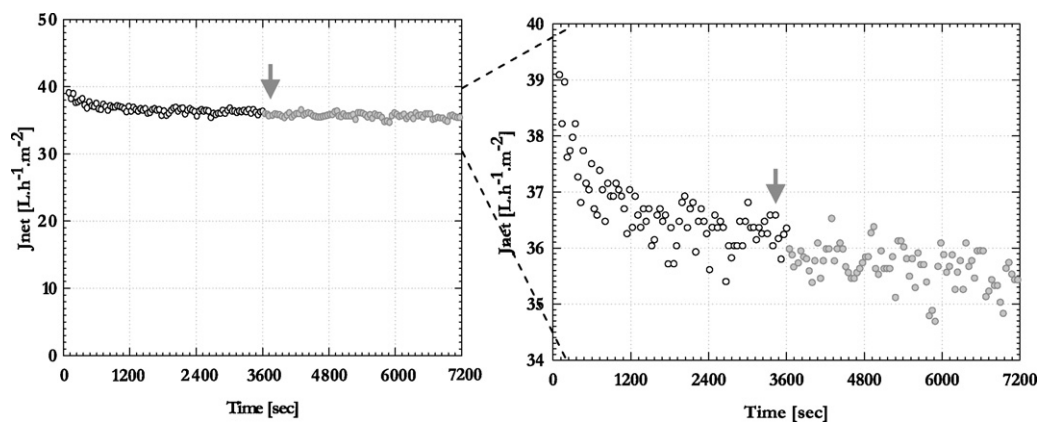


Fig. 12. Effect of adding BSA 2 g L⁻¹ (arrow) to the filtration of 8 g L⁻¹ of yeast. Net permeate flux decline (0.4 bar).

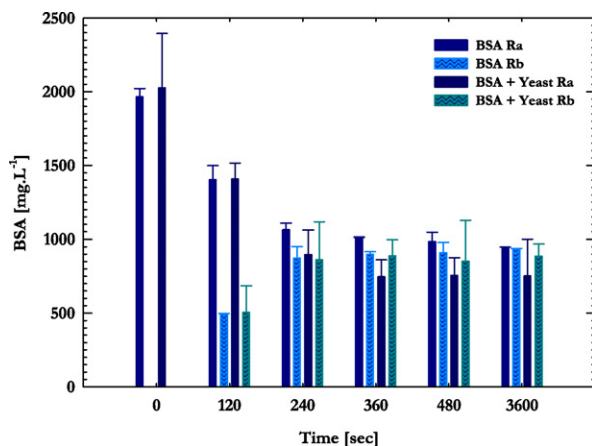


Fig. 13. Amount of protein vs. time in each tank for BSA and BSA/yeast mixture at 0.4 bar.

4.2.2. Protein transmission

As discussed above, the net flux decline with the BSA solution is greater than with the BSA/yeast mixture, probably because residual yeast forms a prefilter on the membrane surface. Moreover, as shown in Section 4.1, the overall homogenization rates of BSA solutions for each ΔP are not notably different. Although the net flux was higher when yeast was added to the solution of BSA as seen in Fig. 11, no difference was observed between the two solutions in terms of overall homogenization rate (240 s) and the feed concentration did not exhibit notable reduction of concentration up to the end of the experiments (Fig. 13).

Thus, the effects of the fluid characteristics for a fixed operating condition were evaluated. The experiments showed that a small amount of yeast on the membrane was able to reduce the net flux decline but had no noticeable effect on protein transmission and homogenization rate. These observations are convenient for the device's utility.

5. Conclusions

In order to rationally optimize the operating conditions of the process, this work examined membrane fouling and protein transmission during microfiltration of protein and protein-cell mixture with a high frequency of backpulsing. Although this process provides an atypical filtration mode using a long backward filtration time (compared to those presented in the literature), little membrane fouling occurred when protein, yeast suspension or protein/yeast mixture were filtered. This fouling showed itself as

a decline in the net permeate flux of less than 20% of its initial value for each operating condition tested. In terms of protein transmission, no noticeable differences were observed for the overall mixing time and the concentrations were able to reach the same values in both reactors in 240 s. The net permeate flux at steady state was found to be proportional to the transmembrane pressure, showing that the flux, within the design range and for this type of microfiltration module, is predominantly determined by membrane properties.

In terms of protein transmission, no differences were observed for the different conditions tested. So, as far as the driving process is concerned, with high protein and biomass concentrations, higher transmembrane pressure will permit lower net flux decline and higher transmission performance. Net flux decline in the case of a BSA solution was found to be greater than for a mixture of BSA/yeast, linking with theory found in the literature. A thin yeast cake on the primary membrane could retain protein aggregates and reduce protein fouling.

To sum up the last conclusions and to give some operating recommendations for the use of this specific bioreactor, it is clear that enhancing transmembrane pressure leads to higher net flux and will allow higher soluble compounds transmission between the two tanks. As far as the fouling by soluble compounds of a similar size to the pores of the membrane is concerned, we could do some assumptions about adding inert particles to prevent net flux decline. Indeed this study and some authors [19] showed that yeast prevent internal fouling of small colloids, more precisely proteins monomers, by forming a prefilter entrapping these particles. Adding inert particles to the filtration-fermentation process could enhance the overall mixing rate by reducing internal fouling and improving net flux.

The study of this atypical process, involving rapid forward and backward filtration, shows interesting performances transposed to the field of application chosen. Indeed, as we discussed in the first part, as long as the interest compounds concentration equality is respected, this bioreactor could be used in the study of the behavior and interaction phenomena of microbial in dairy and oenological consortium involving protein and biomass at concentration levels closed to these used in this experiments [18,24].

Acknowledgements

The authors would like to thank Christophe Ellero for his technical support and Susan A. Becker for revising the English.

Appendix A. Nomenclature

ΔP	transmembrane pressure (bar)
EV1	electro-valve 1

EV2	electro-valve 2
J_{net}	net permeate flux ($\text{L h}^{-1} \text{m}^{-2}$)
J_{ssnet}	steady-state net permeate flux ($\text{L h}^{-1} \text{m}^{-2}$)
J_f	permeate forward flux ($\text{L h}^{-1} \text{m}^{-2}$)
J_b	permeate backward flux ($\text{L h}^{-1} \text{m}^{-2}$)
R_f	fouling resistance (m^2)
R_{ir}	irreversible fouling resistance (m^2)
R_m	membrane resistance (m^2)
R_r	reversible resistance (m^2)
t_f	duration of forward filtration (s)
t_b	duration of backward filtration (s)
S_{fi}	total inner forward filtration surface (m^2)
S_{fe}	total outer backward filtration surface (m^2)

References

- [1] B. Cheirsilp, H. Shoji, H. Shimizu, S. Shioya, Interactions between *Lactobacillus kefirifaciens* and *Saccharomyces cerevisiae* in mixed culture for kefir production, *Journal of Bioscience and Bioengineering* 96 (2003) 279–284.
- [2] B.C. Viljoen, The interaction between yeasts and bacteria in dairy environments, *International Journal of Food Microbiology* 69 (2001) 37–44.
- [3] J.S. Andrews, V.P. Mason, I.P. Thompson, G.M. Stephens, G.H. Markx, Construction of artificially structured microbial consortia (ASMC) using dielectrophoresis: examining bacterial interactions via metabolic intermediates within environmental biofilms, *Journal of Microbiological Methods* 64 (2006) 96–106.
- [4] T. Terahara, T. Hoshino, S. Tsuneda, A.H.Y. Inamori, Monitoring the microbial population dynamics at the start-up stage of wastewater treatment reactor by terminal restriction fragment length polymorphism analysis based on 16S rDNA and rRNA gene sequences, *Journal of Bioscience and Bioengineering* 98 (2004) 425–428.
- [5] M. Gobetti, M. De Angelis, R. Di Cagno, F. Minervini, A. Limitone, Cell–cell communication in food related bacteria, *International Journal of Food Microbiology* 120 (2007) 34–45.
- [6] S. de Candia, M. De Angelis, E. Dunlea, F. Minervini, P.L.H. McSweeney, M. Faccia, M. Gobetti, Molecular identification and typing of natural whey starter cultures and microbiological and compositional properties of related traditional Mozzarella cheeses, *International Journal of Food Microbiology* 119 (2007) 182–191.
- [7] T. Tannenbaum, Multiple Diffusion Chamber, U.S. Patent No. 3,893,891 (1975).
- [8] L.J. Pestchanker, E.C. Ercoli, A novel membrane reactor design for the controlled studies of interacting populations (Simulation of the interaction between microorganism and plant suspension cultures), *Biotechnology and Bioengineering* 55 (1997) 609–615.
- [9] E. Salgado, C. Albasi, J.P. Riba, A two-reservoir, hollow-fiber bioreactor for the study of mixed-population dynamics: design aspects and validation of the approach, *Biotechnology and Bioengineering* 69 (2000) 401–408.
- [10] E. Salgado, Conception et mise en œuvre d'un bioréacteur à membranes pour l'étude de la dynamique de populations mixtes de micro-organismes, PhD thesis, ENSIGC-INPT, Toulouse, France, 1999.
- [11] C. Albasi, J.P. Riba, E. Salgado, J.P. Monna, J.M. Espenan, Procédé et appareil pour l'homogénéisation de deux milieux liquides contenant des composants solides ou dissous et/ou des micro-organismes, French Patent 9,809,563 (1998).
- [12] S. Pommier, C. Albasi, J.P. Riba, M.-L. Délia, A new membrane tool for quantifying microorganism interaction dynamics. Application to yeast killer systems, *Desalination* 149 (2002) 243–245.
- [13] V.T. Kuberkar, R.H. Davis, Microfiltration of protein-cell mixtures with cross-flushing or backflushing, *Journal of Membrane Science* 183 (2001) 1–14.
- [14] S.G. Redkar, R.H. Davis, Cross-flow microfiltration with high-frequency reverse filtration, *AIChE J* 41 (1995) 501–508.
- [15] V.T. Kuberkar, P. Czekaj, R.H. Davis, Flux enhancement for membrane filtration of bacterial suspensions using high-frequency backpulsing, *Biotechnology and Bioengineering* 60 (1998) 77–87.
- [16] T. Tanaka, H. Itoh, K. Nakanishi, T. Kume, R. Matsuno, Crossflow filtration of baker's yeast with periodical stopping of permeation flow and bubbling, *Biotechnology and Bioengineering* 47 (1995) 401–404.
- [17] P.J. Smith, S. Vigneswaran, H.H. Ngo, R. Ben-Aim, H. Nguyen, A new approach to backwash initiation in membrane systems, *Journal of Membrane Science* 278 (2006) 381–389.
- [18] S. Pommier, P. Strehlaiano, M.-L. Délia, Modelling the growth dynamics of interacting mixed cultures: a case of amensalism, *International Journal of Food Microbiology* 100 (2005) 131–139.
- [19] C. Güell, P. Czekaj, R.H. Davis, Microfiltration of protein mixtures and the effects of yeast on membrane fouling, *Journal of Membrane Science* 155 (1999) 113–122.
- [20] C. Güell, R.H. Davis, Membrane fouling during microfiltration of protein mixtures, *Journal of Membrane Science* 119 (1996) 269–284.
- [21] E.M. Tracey, R.H. Davis, Protein fouling of track-etched polycarbonate microfiltration membranes, *Journal of Colloid and Interface Science* 167 (1994) 104–116.
- [22] A. Persson, A.S. Jönsson, G. Zacchi, Transmission of BSA during cross-flow microfiltration: influence of pH and salt concentration, *Journal of Membrane Science* 223 (2003) 11–21.
- [23] J.P. Remize, Etude des rétrolavages assistés par l'air et contrôle du colmatage résiduel. Application à la production d'eau potable en filtration frontale, PhD thesis, INSA, Toulouse, 2006.
- [24] N. Nehme, F. Mathieu, P. Taillandier, Quantitative study of interactions between *Saccharomyces cerevisiae* and *Oenococcus oeni* strains, *Journal of Industrial Microbiology and Biotechnology* 35 (2008) 685–693.
- [25] Y. Xu, J. Dodds, D. Leclerc, Optimization of a discontinuous microfiltration-backwash process, *The Chemical Engineering Journal* 57 (1993) 247–251.
- [26] A. McCarthy, P.K. Walsh, G. Foley, Experimental techniques for quantifying the cake mass, the cake and membrane resistances and the specific cake resistance during crossflow filtration of microbial suspensions, *Journal of Membrane Science* 201 (2002) 31–45.

V.3.2 Bilan.

L'article précédent présente les performances de filtration du module de filtration de 2800 fibres ce qui correspond à une forte compacité ($\Phi=0,8$). Le mode de filtration interne/externe, pour le fluide modèle Levures/BSA, mélange le plus proches des milieux de fermentation parmi les fluides modèles choisis, nous a permis d'évaluer le potentiel du pilote en terme de performances de filtration : La perte de flux maximale, inférieure à 20% de sa valeur initiale dans les conditions expérimentales utilisées, démontre des performances excellentes sur le contrôle du colmatage et le maintien d'un flux net. Concernant l'homogénéisation de la phase liquide des deux réacteurs, le temps de mélange reste inférieur à 240 secondes pour les conditions opératoires utilisées, marquant également les bonnes performances du pilote. Ainsi, ces premières conclusions laissent à penser que le dispositif répond bien aux critères initiaux de sa conception qui sont une séparation des particules (micro-organismes) à l'aide d'une membrane tout en permettant l'homogénéisation de la phase liquide. Il faut néanmoins s'assurer que les performances obtenues dans l'autre sens de filtration ne viennent pas interférer.

Le module pouvant fonctionner dans les deux sens de filtration, il est important d'évaluer ses performances en mode de filtration Externe/Interne pour le fluide modèle levures/BSA afin d'évaluer et de comparer les performances du pilote en fonction du sens de filtration. Ceci sera

V.4 Performances de filtration du module en mode Externe/Interne.

Les résultats présentés dans la partie suivante ont pour objectif d'évaluer les performances de filtration du module compact à 2800 fibres en mode de filtration **Externe/Interne**. L'article précédent nous a permis de déterminer des conditions optimales de PTM (0.8 bar) permettant un flux net le plus important et une transmission rapide de composés solubles d'intérêts.

Ainsi, la partie suivante s'appuie sur ces conclusions pour discuter les résultats en mode de filtration **Externe/Interne**, pour finalement les comparer.

Rappel sur le calcul des flux net J_{net} :

Afin de permettre une meilleure compréhension des différents mécanismes se produisant lors d'un cycle de filtration suivi d'un cycle de rétrofiltration dans ce procédé particulier, nous avons mis en place un paramètre que l'on nomme flux net J_{net} qui traduit les performances intrinsèque en terme de « productivité » :

$$J_{net} = \frac{\left(\int_0^{t_f} J_f(t) dt - \int_{t_f}^{t_f+t_b} J_b(t) dt \right)}{(t_f + t_b)} \quad \text{Équation V-8}$$

Dans le sens de filtration Interne/Externe, J_f correspond au flux de filtration dans le sens Interne/Externe et J_b correspond au flux de rétrofiltration dans le sens Externe/Interne :

$$J_{net} = \frac{J_{fIE} \cdot t_{fIE} - J_{bEI} \cdot t_{bEI}}{(t_{fIE} + t_{bEI})} \quad \text{Équation V-9}$$

La réciproque pour le sens Externe/Interne est J_f , flux de filtration en Externe/Interne et J_b , flux de rétrofiltration Interne/Externe :

$$J_{netEI} = \frac{J_{fEI} \cdot t_{fEI} - J_{bIE} \cdot t_{bIE}}{(t_{fEI} + t_{bIE})} \quad \text{Équation V-10}$$

V.4.1 Flux net : comparaison des deux modes de filtration.

La Figure V-3 suivante présente l'évolution du flux net (gauche) et du flux net normalisé sur le flux initial à l'eau (droite), pour les deux modes de filtration concernant le fluide modèle levures/BSA décrit dans le matériels et méthodes au paragraphe II-3 ($\Phi=0,8$, 2800 fibres, PTM = 0,8 bar, Vf = 400 mL).

Concernant le flux net de filtration en Interne/Externe, une diminution est observée dès les premières 300 secondes de filtration. Cette diminution est ralentie pour atteindre un état stationnaire à $64 \text{ L.h}^{-1}.\text{m}^{-2}$. Concernant le flux net de filtration Externe/Interne, sa valeur est négative et augmente jusqu'à atteindre la aussi un état stationnaire. Ce résultat peut paraître surprenant en premier lieu si l'on garde à l'esprit la définition générale du flux net retrouvé dans la littérature. Dans notre cas, si l'on se réfère l'Equation V-9, un flux net négatif signifie que le flux de rétrofiltration dans le sens Interne/Externe J_{IE} est supérieur au flux de filtration dans le sens Externe/Interne J_{EI} . On peut expliquer cette différence comme suit : les « perméabilités des modules » dans les deux sens de filtration sont différentes et la perméabilité du module en Interne/Externe est supérieure à celle en Externe/Interne. Nous parlons donc de perméabilité de module et non pas de perméabilité membranaire. Pour rappel, la perméabilité d'une membrane est généralement caractérisée par sa conductivité hydraulique en $\text{m}^3.\text{s}^{-1}.\text{m}^2.\text{bar}^{-1}$. En utilisant la loi de Darcy et en supposant que la membrane est un milieu poreux homogène la perméabilité L_p peut être définie comme suit : $L_p = K_m / \mu.e_m$ où K_m est la perméabilité intrinsèque (m^2), et e_m l'épaisseur de la membrane. A noter également que K_m n'est pas homogène selon la zone de membrane considérée. Dans notre cas si l'on regarde les « perméabilités du module » dans les deux sens de filtration, caractérisées par le coefficient directeur de la droite « flux spécifique de filtration $J = f(\text{PTM})$ », elles sont supérieures en Interne/Externe qu'en mode Externe/Interne: $L_{p\text{IE}} > L_{p\text{EI}}$ (cf annexe). Par extension, Les flux à l'eau seront supérieurs en Interne/Externe qu'en Externe/Interne. Ceci peut être expliqué par les différences de répartition des pertes de charges lors de l'écoulement à l'intérieur des fibres ou à l'extérieur des fibres (Cf. article n°2). Ajouté à cela, probablement, un écartement relatif des fibres lors de la filtration Interne/Externe permettant un meilleur écoulement, contrairement au rapprochement des fibres en filtration Externe/Interne engendré par l'aspiration de liquide. Donc, en termes de performances, la filtration en mode Interne/Externe, sur ce type de fluide modèle doit être préconisée par rapport au mode de filtration Externe/Interne.

Maintenant considérons le flux net normalisé. Si les flux nets en mode Interne/Externe sont toujours plus grands devant les flux nets en mode Externe/Interne, la normalisation va nous

permettre d'évaluer l'écart entre le flux net initial à l'eau (Flux net optimal dans une condition donnée) et le flux net à l'instant t .

Trois zones distinctes sont observées sur la Figure V-3. Une première zone de chute de flux plus importante dans les premières 600 sec avec perte de 18% pour le mode Interne/Externe et une perte de 12 % pour le mode Externe/Interne est observée. Cette première zone est suivie d'une deuxième zone de ralentissement de la diminution du flux net. Puis, il y apparition d'une troisième zone, correspondant à un état pseudo stationnaire en mode de filtration Externe/Interne et un état stationnaire en mode de filtration Interne/Externe. En effet, le flux chute de manière linéaire pour atteindre une valeur de 80 % du flux initial en EI alors qu'il reste à cette valeur de 80 % dès le début de la deuxième phase en IE.

L'impact du sens de filtration sur les performances de filtration a donc un effet dans la première zone de filtration, montrant une chute de flux plus importante en Interne/Externe, qu'en mode Externe/Interne. Néanmoins, la deuxième phase de diminution de flux semble montrer un comportement différent en fonction du sens de filtration. La diminution de flux net ne dépasse pas 20% dans le sens le plus défavorable, démontrant finalement que quel que soit le sens de filtration, les capacités de filtration sur ce type de fluide biologique modèle restent très bonnes en fonction du temps.

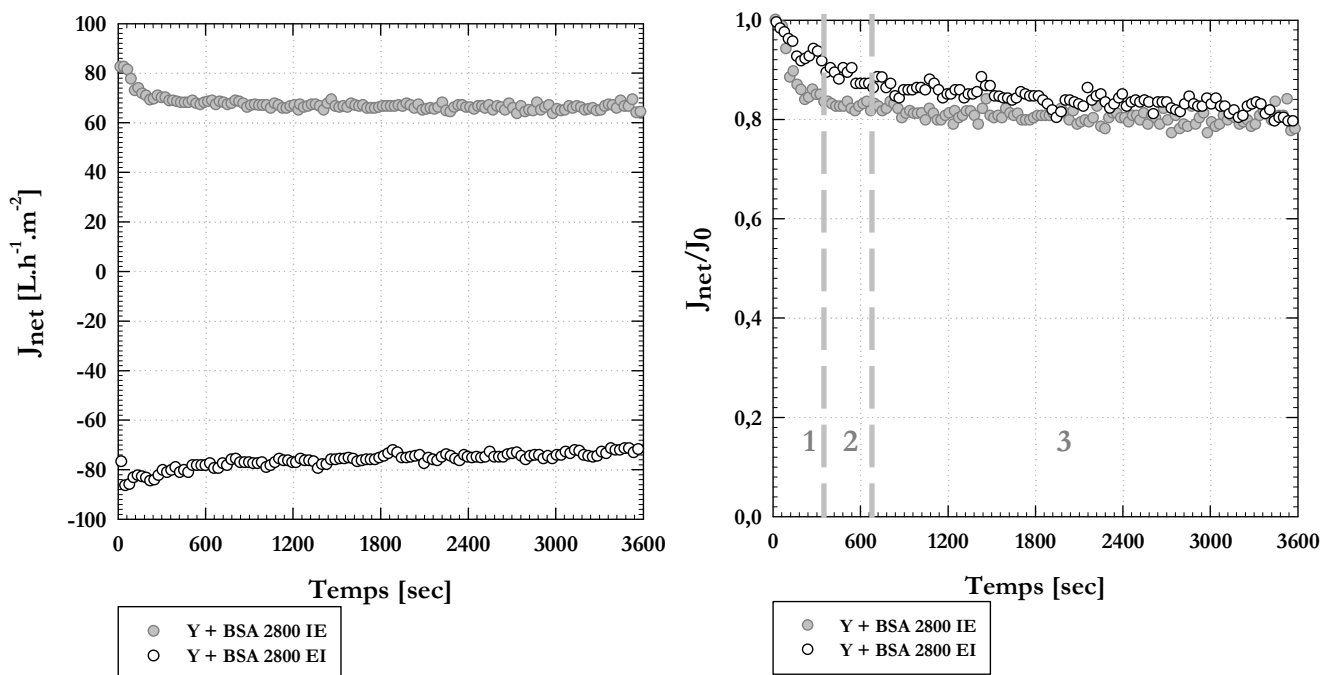


Figure V-3. Evolution du flux net normalisé et du flux net en fonction du temps, pour le mélange levures/BSA, en mode de filtration Interne/Externe et Externe/Interne.

L'approfondissement de l'étude du point de vue quantitatif est réalisé par l'évaluation des différentes résistances de colmatage liées au fonctionnement du procédé. En effet, en fonction du sens de filtration et du sens de rétrofiltration, l'impact des différentes résistances liées au dépôt et/ou à l'adsorption de composés soluble (BSA) devrait nous apporter certains éléments de compréhension.

V.4.2 Influence de la composition du fluide sur l'évolution des différentes résistances de colmatage au cours du temps.

L'analyse que nous proposons de mener dans ce paragraphe s'appuie sur trois résistances définies dans le matériel & méthodes : la résistance créée pendant un cycle de filtration $R_{f(n)}$, la résistance éliminée durant le cycle de rétrofiltration $R_{e(n)}$ et enfin la résistance restant à la surface de la membrane après cette rétrofiltration $R_{r(n)}$.

V.4.2.1 Evolution des différentes résistances de colmatage au cours du fonctionnement du procédé.

La Figure V-4 présente l'évolution de la résistance de colmatage formé au cours de chaque cycle de filtration $R_{F(n)}$ pour les deux sens de filtration Interne/Externe et Externe/Interne en fonction du temps. Cette figure montre deux évolutions différentes de la résistance induite pour chaque sens de filtration.

Pour le sens de filtration Externe/Interne, la résistance augmente lentement en fonction du temps en début de filtration pendant les premières 1200 secondes, pour atteindre une zone d'augmentation linéaire en fonction du temps. Elle reste en moyenne inférieure à $2 \cdot 10^{11} \text{m}^{-1}$ en fin de manipulation.

Au contraire, elle augmente plus fortement dans les premières 1200 secondes pour atteindre une valeur stationnaire maintenue jusqu'à la fin de l'expérience en ce qui concerne le mode de filtration Interne/Externe.

Cette différence de comportement observé sur la Figure V-4 peut paraître étonnante car il s'agit de la résistance obtenue pendant le cycle de filtration et l'on s'aperçoit donc que pour un même fluide, filtré dans des conditions identiques (même pression transmembranaire, même volume de filtration), la résistance de colmatage créée peut être différente selon le sens de filtration appliqué.

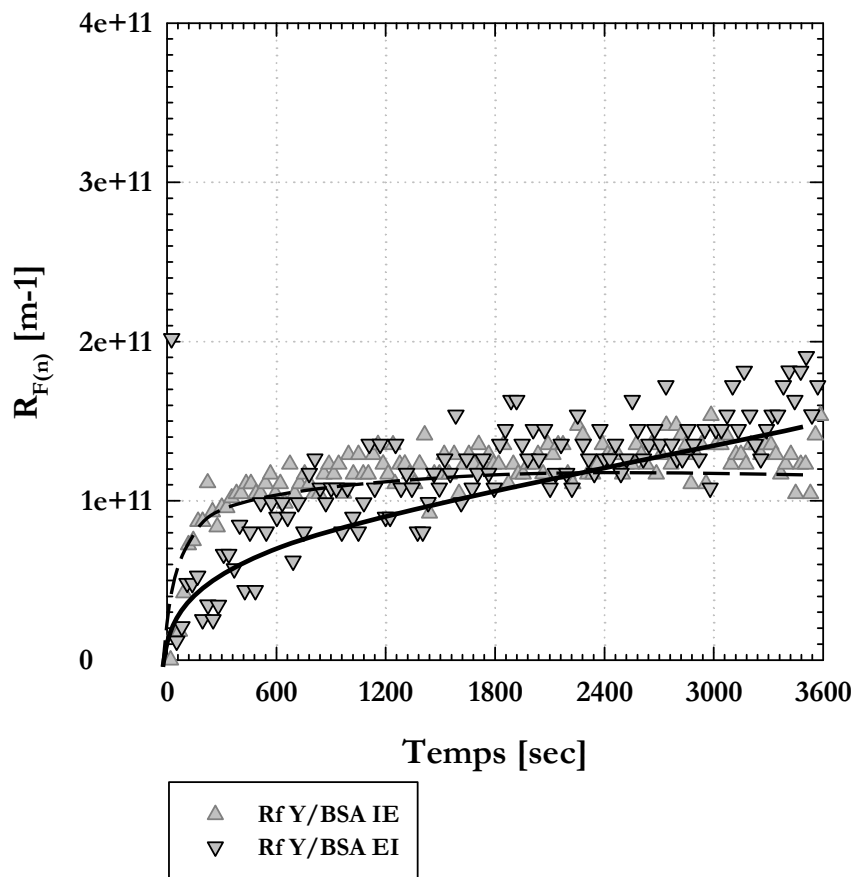


Figure V-4. Evolution de la résistance formée à chaque cycle de filtration en fonction du temps, pour le mélange levures/BSA en mode Externe/Interne et Interne/Externe.

Une hypothèse principale peut être formulée pour expliquer ce phénomène:

- L'état de surface de la membrane à la reprise du cycle de filtration peut avoir une influence sur la vitesse de colmatage au cours de ce cycle et donc sur l'étendue de R_F . En d'autres termes, une différence de l'état de surface de la membrane à la fin d'une rétrofiltration et la persistance de matière à sa surface peut entraîner une différence de résistance accumulée au cours du cycle de filtration suivant, même si les conditions de filtration sont identiques en termes de PTM et de volume filtré. Cette capacité de rétrofiltration du module membranaire peut être liée à la facilité du fluide à s'écouler à l'intérieur des fibres (cycle de rétrofiltration en EI) ou entre les fibres du module (cycle de filtration en Interne/Externe).

Si l'on compare la valeur maximale de résistance de dépôt formé lors du cycle de filtration à la résistance membranaire (Cf. Tableau V-I-1), elle sera toujours inférieure à cette dernière.

Tableau V-I-1. Différentes résistances membranaires et de dépôts retrouvées en filtration sur le module 2800 fibres.

	Résistance du module [m ⁻¹]	Résistance maximum du dépôt [m ⁻¹]
Interne/Externe	5.2x10 ¹¹	1.5x10 ¹¹
Externe/Interne	8.7x10 ¹¹	2x10 ¹¹

Autrement dit, la résistance totale lors du cycle de filtration Interne/Externe R_{tie} sera toujours inférieure à la résistance totale de rétro filtration R_{tei} :

$$R_{tie} = R_{m_{ie}} + R_{f_{ie}}$$

$$R_{tei} = R_{m_{ei}} + R_{e_{ei}}$$

$$R_{m_{ie}} < R_{m_{ei}}$$

$$R_{f_{ie}} > R_{e_{ei}}$$

Avec :

- $R_{m_{ie}}$: la résistance du module en Interne/Externe
- $R_{m_{ei}}$: la résistance du module en Externe/Interne
- $R_{f_{ie}}$: résistance formée pendant le cycle de filtration en Interne/Externe
- $R_{e_{ei}}$: résistance éliminée pendant le cycle de rétro filtration Externe/Interne.

Tant que la différence entre R_{mie} et R_{mei} est supérieure à la différence entre R_{fie} et R_{eei} , on peut écrire que la résistance totale lors du cycle de filtration restera supérieure à la résistance totale lors du cycle de rétro filtration : $R_{tie} > R_{tei}$. En d'autres termes, s'il n'y a pas apparition d'une résistance supplémentaire lors du cycle de rétro filtration.

La Figure V-5 représente les variations de résistance résiduelle $R_{R(n)}$ à l'issue de chaque cycle de filtration en fonction du temps. Très peu de différence sont à noter si l'on compare ces valeurs de résistances en fonction du sens de filtration. Néanmoins, la résistance résiduelle totale est légèrement supérieure pour le mode de filtration Externe/Interne que pour le mode Interne/Externe.

En d'autres termes, le dépôt formé pendant le cycle de filtration est moins bien éliminé lorsqu'il se forme à l'extérieur des fibres qu'à l'intérieur. La rétrofiltration semble donc plus efficace quand elle se déroule dans le sens Interne/Externe que dans le sens Externe/Interne.

D'après l'hypothèse précédente, une explication peut être formulée à ce point : le dépôt, en mode Externe/Interne, se forme sur la surface externe de toutes les fibres, qu'elles soient situées sur la périphérie ou au cœur du module (Figure V-6 gauche). Le cycle de rétrofiltration suivant peut probablement permettre d'éliminer une partie du dépôt qui s'est formé sur les fibres situées à l'extérieur du module (Figure V-6 droite). En effet, l'écoulement du fluide rétro filtré peut être limité par un rapprochement des fibres plus important au centre du module qu'en périphérie, empêchant de ce fait l'élimination totale du dépôt dans tout le module.

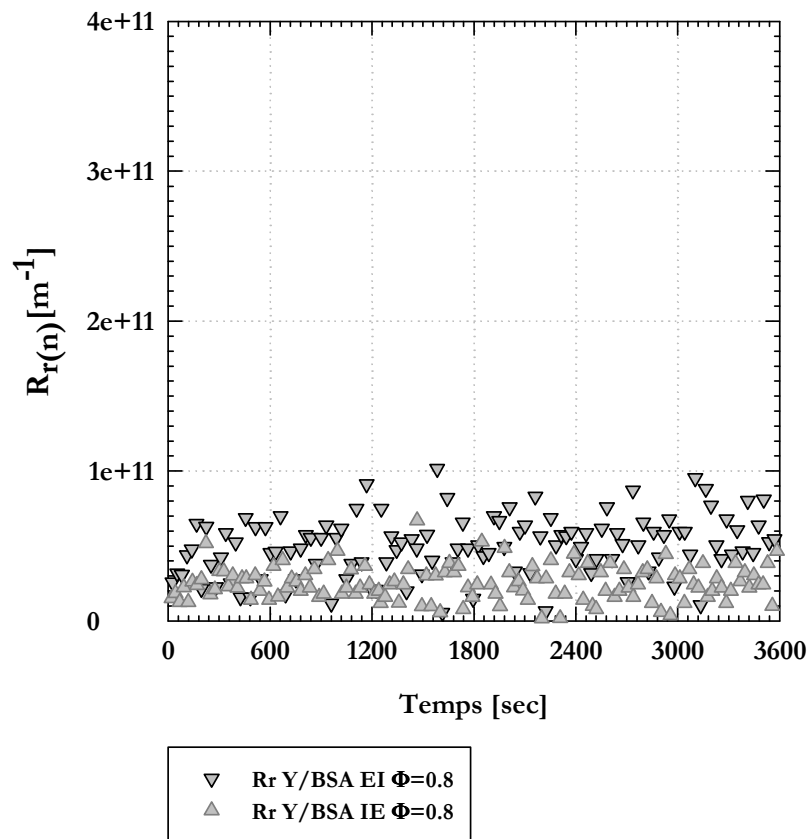


Figure V-5. Evolution de la résistance résiduelle en fonction du temps, pour le mélange levures/BSA en mode de filtration Interne/Externe et Externe/Interne

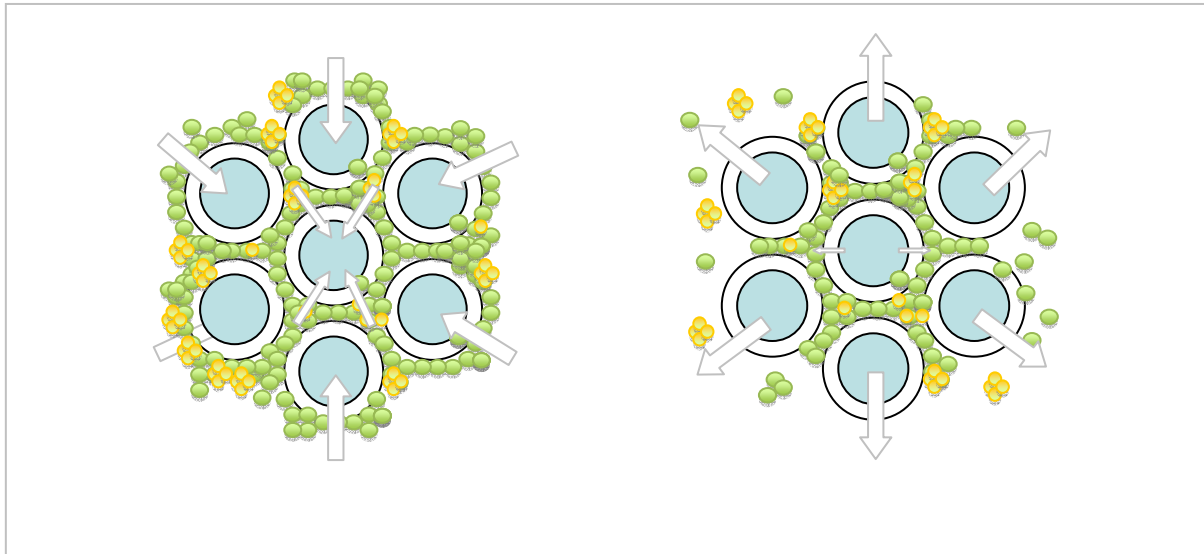


Figure V-6. Représentation schématisée du phénomène de colmatage/rétrofiltration en mode Externe/Interne pour le module 2800 fibres sur un cycle.

V.4.2.2 Bilan intermédiaire sur l'utilisation du module 2800 fibres.

L'utilisation d'un module de compacité forte ($\Phi = 0.8$, 2800 fibres) introduit la notion de confinement des fibres. Les performances de filtration nous montrent un flux net négatif en Externe/Interne et inférieur au flux net en Interne/Externe. On observe également une diminution du flux net de filtration normalisé plus importante en Interne/Externe lors d'une première phase, qu'en mode Externe/Interne, ces différences s'annulant en fin d'expérimentation. Les performances de filtration restent néanmoins excellentes avec une chute de 20 % comparé au flux initial à l'eau. Ces différences peuvent être, à priori, dues au rapprochement des fibres à l'origine d'une élimination différente de la matière accumulée selon la localisation des fibres dans le module. Ceci semble confirmé par l'étude de la résistance résiduelle qui, en mode Externe/Interne, semble plus importante traduisant un colmatage résiduel pouvant être particulière et/ou irréversible par l'adsorption de composés organiques solubles.

V.5 Performances de filtration lors de l'utilisation du module 1400 fibres.

V.5.1 Flux net de perméat en fonction du sens de filtration.

La Figure V-7 suivante présente l'évolution du flux net (gauche) et du flux net normalisé au flux net initiale à l'eau (droite) pour le module de plus faible compacité ($\Phi=0.4$, 1400 fibres, PTM = 0.8 bar, $V_f = 400$ mL), dans les deux sens de filtration, pour la filtration du fluide modèle décrit au paragraphe II-3 du Chapitre II.

Concernant le flux net de filtration en Interne/Externe, une forte diminution est observée dès les premières 300 secondes de filtration. Cette diminution est par la suite plus progressive pour atteindre un état pseudo-stationnaire et une valeur de $36 \text{ L.h}^{-1}.\text{m}^{-2}$ en fin d'expérimentation. Si l'on regarde le flux net de filtration externe/interne, sa valeur est négative et augmente jusqu'à atteindre un état pseudo stationnaire. De manière similaire à la description du paragraphe V.4.1 pour le module 2800 fibres, le choix du sens de filtration Interne/Externe par rapport au sens de filtration Externe/interne pour ce type de fluides est indiqué.

Si maintenant le flux net est normalisé par le flux net initial à l'eau représenté sur la Figure V-7 (gauche), trois zones de variation du flux notées 1, 2, 3, peuvent également être distinguées. Pour le mode de filtration Externe/Interne : on observe une chute de flux net dans les 300 premières secondes puis un ralentissement jusqu'à atteindre un état pseudo stationnaire à 600 secondes. La chute de flux net est de 18%. La troisième zone de chute de flux est linéaire jusqu'à la fin de l'expérimentation pour atteindre finalement une chute totale du flux net normalisé de 26 %.

Si le mode de filtration Interne/Externe présente ces trois mêmes zones de chutes de flux, le profil est beaucoup plus marqué. En effet, la première zone de diminution de flux est très importante montrant une diminution de 36 % dans les 300 première secondes. Un ralentissement de cette chute jusqu'à 600 secondes (60 % du flux net à l'eau) est ensuite observé suivie d'une zone de diminution linéaire jusqu'à 46 % du flux initiale.

Cette comparaison nous montre un comportement encore plus marqué en termes de chute de flux net que celui du module plus compact de 2800 fibres. Le flux net de filtration normalisé est supérieur au bout d'une heure d'expérimentation en mode de filtration Externe/Interne à celui obtenu en mode Interne/Externe. Ceci semble lié à la forte diminution du flux net dans les deux premières phases de filtration en mode Interne/Externe.

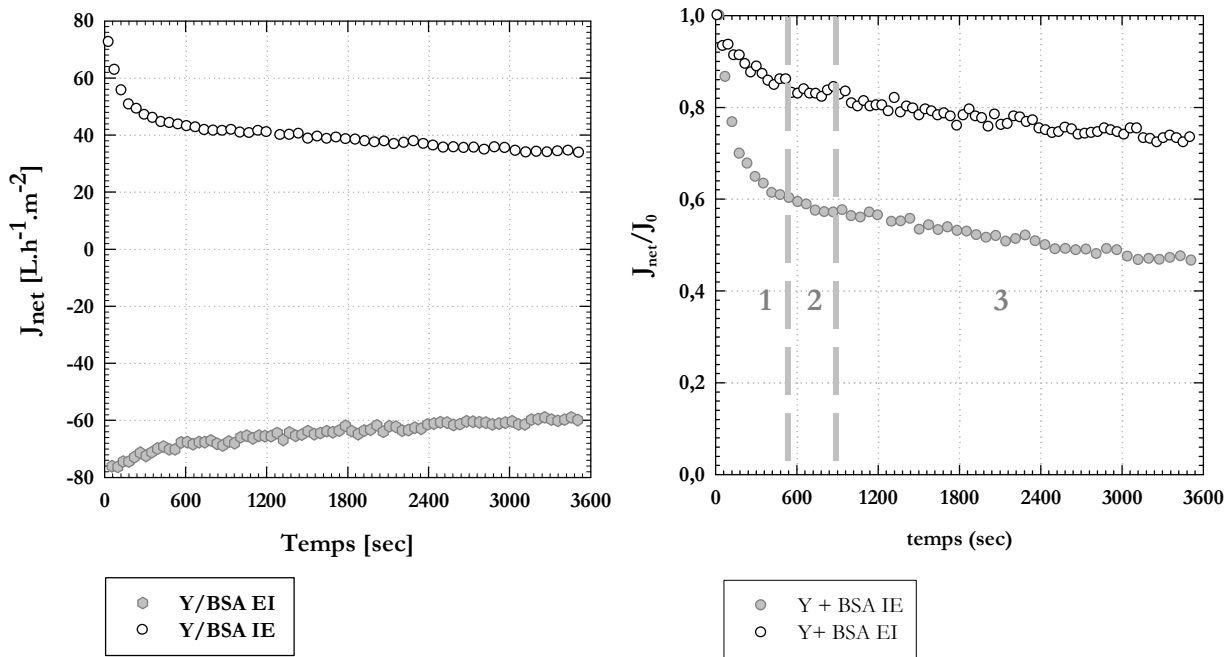


Figure V-7. Evolution du flux net (gauche) et du flux net normalisé sur le flux net initial à l'eau (droite) en fonction du temps pour le mélanges BSA/levures, en mode Interne/externe et externe/interne ($\Phi=0,4$).

Concernant la résistance formée au cours de chaque cycle de filtration $R_{F(n)}$, la Figure V-8 représente ses variations en fonction du temps pour les deux modes de filtration. Pour le mode Interne/Externe : La résistance de filtration augmente au cours du temps, $R_{F(n)}$ devient supérieure à R_m après seulement 10 secondes (phase 1 : $dR_{F(n)}/dt = 1 \times 10^9 \text{ m}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1}$). La seconde phase montre un ralentissement de l'augmentation de $R_{F(n)}$ ($dR_{F(n)}/dt = 2 \times 10^8 \text{ m}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1}$), suivie d'une troisième phase d'augmentation linéaire ($dR_{F(n)}/dt = 1 \times 10^8 \text{ m}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1}$).

Le mode Externe/Interne présente le même comportement, mais la $R_{F(n)}$ est plus faible, trois zones se distinguent également : une première zone présentant une augmentation de $R_{F(n)}$ ($dR_{F(n)}/dt = 2 \times 10^8 \text{ m}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1}$), une deuxième zone de ralentissement ($dR_{F(n)}/dt = 5 \times 10^7 \text{ m}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1}$) suivie d'une zone d'augmentation linéaire de la résistance ($dR_{F(n)}/dt = 3 \times 10^7 \text{ m}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1}$).

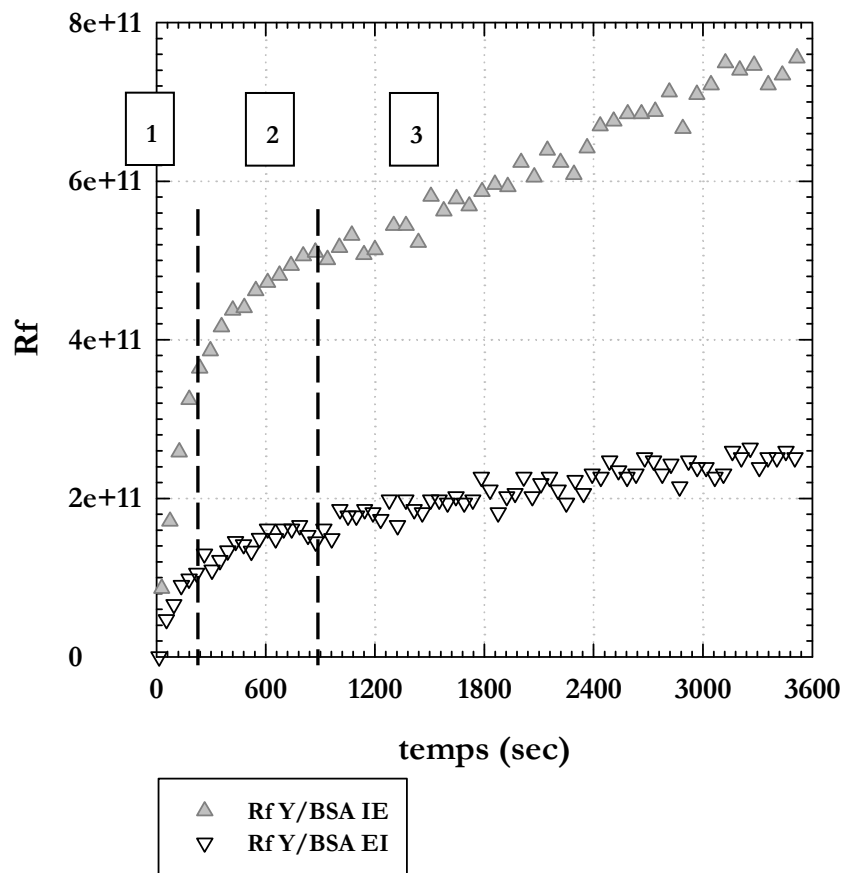


Figure V-8. Evolution de la résistance en fonction du temps, pour le mélange Levures/BSA, en mode de filtration Interne/externe et Externe/interne sur le module à 1400 fibres ($\Phi=0,4$).

L'évolution de la résistance au cours des cycles de filtration est supérieure à celle observée pour une compacité deux fois plus élevée en mode de filtration Interne/Externe.

L'hypothèse pouvant être formulée ici est la suivante : le temps de rétrofiltration n'est probablement pas assez important pour permettre une élimination totale du dépôt à l'extérieur du module. Le liquide de rétrofiltration devrait traverser la membrane présentant une résistance R_m , bien supérieure à la résistance liée à ce colmatage résiduel particulaire qui aurait été « expansé » dès le début du cycle de rétrofiltration par le passage du perméat. Ce dépôt ne pourrait donc pas être correctement évacué des fibres du module. Lors de la reprise de la filtration, le liquide filtré traverserait d'abord ce colmatage résiduel particulaire, qui serait à nouveau « comprimé », puis traverserait la membrane. On aurait donc une accumulation d'un dépôt mobile à l'intérieur des fibres.

La Figure V -9 représente les variations de résistance résiduelle totale $R_{r(n)}$ pendant chaque cycle de filtration en fonction du temps. Le mode de filtration Interne/Externe voit sa résistance

résiduelle $R_{R(n)}$ augmenter de manière très importante dès les premiers cycles de filtration, cette augmentation se poursuivant de façon linéaire jusqu'à la fin de l'expérimentation. En revanche, la résistance résiduelle $R_{R(n)}$ reste plus faible dans le mode de filtration Externe/Interne.

Ces différences importantes traduisent certainement un comportement différencié en termes d'efficacité de rétrofiltration, hypothèse que l'on se propose de confirmer sur la Figure V-10).

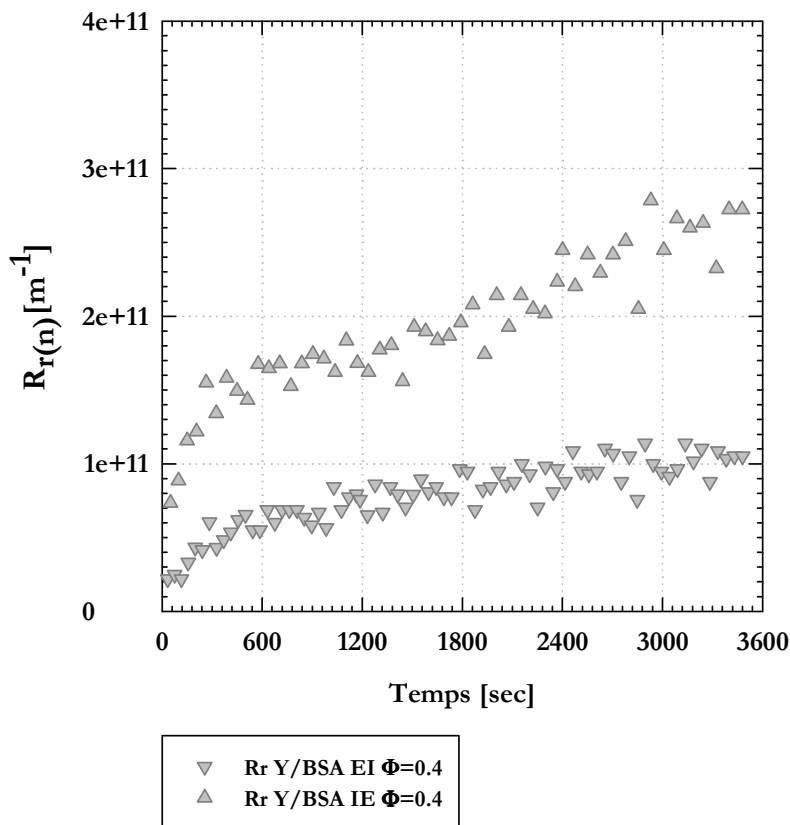


Figure V -9. Evolution de la résistance résiduelle en fonction du temps, pour le fluide modèle Levures/BSA, en mode de filtration Interne/Externe et Externe/Interne ($\Phi=0,4$).

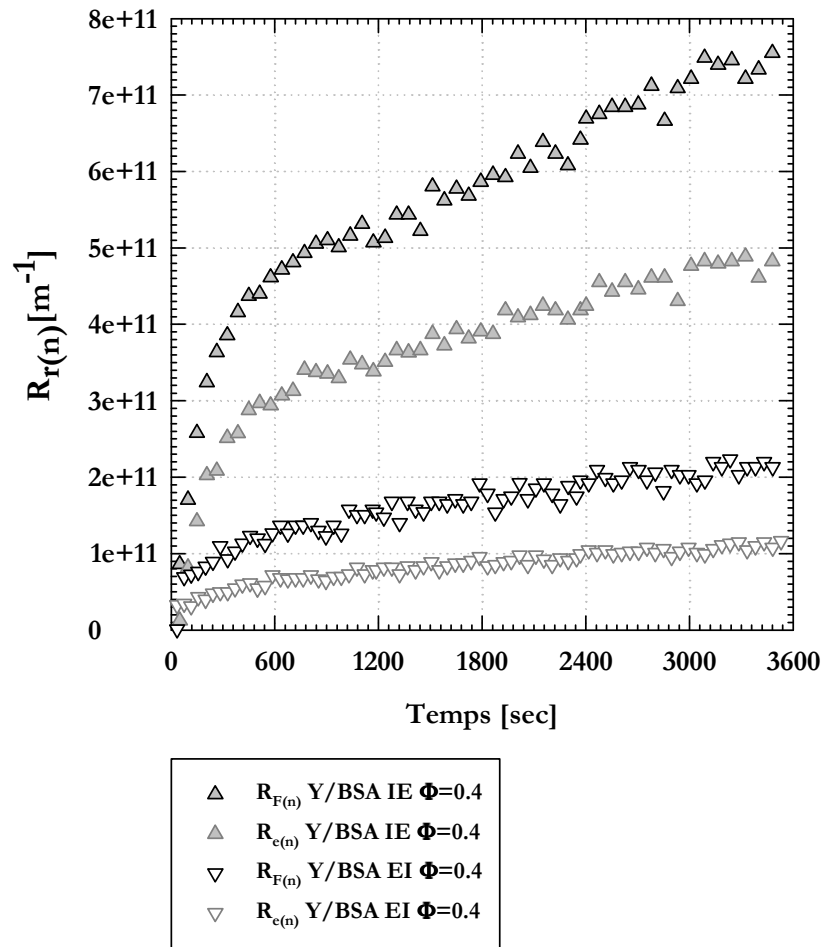


Figure V-10. Evolution de la résistance formée $R_F(n)$ et de la résistance éliminée $R_c(n)$ en fonction du temps, pour le fluide modèles Levures/BSA, en mode de filtration Interne/externe et Externe/interne ($\Phi=0,4$).

La Figure V-10 représente l'évolution de la résistance de colmatage éliminée $R_{e(n)}$ et de la résistance formée $R_{F(n)}$ en fonction du temps d'expérimentation et en fonction du sens de filtration imposé au fluide modèle. Le mode de filtration Interne/Externe présente une résistance éliminée très inférieure à la résistance formée pendant le cycle de filtration, alors que le mode de filtration Externe/interne présente des valeurs sensiblement égales. Comme décrit précédemment, la résistance éliminée correspond au colmatage enlevé par le cycle de rétrofiltration ayant lieu juste après le cycle de filtration précédent. Cette résistance est inférieure à la résistance formée pendant le cycle de filtration en mode Interne/Externe. Conformément à l'hypothèse précédente, une partie de la matière contribuant au colmatage resterait donc à l'intérieur des fibres à la fin du cycle de rétrofiltration. Pour le mode Externe/Interne, les résistances formées et éliminées étant sensiblement égales, le dépôt semble être correctement évacué des fibres lors du cycle de rétrofiltration.

Le colmatage résiduel total (de résistance R_R) a deux origines, une partie irréversible due à l'adsorption de composés solubles organiques (BSA) sur la membrane, et le colmatage résiduel particulaire (BSA et levures). Pour permettre de mieux comprendre le phénomène de colmatage en Interne/Externe, et essayer d'attribuer à chacune de ces deux composantes sa contribution sur l'évolution de la résistance formée à chaque cycle, une détermination des valeurs de résistance obtenues pour des levures ou pour de la BSA est effectuée.

De manière identique à l'article n°3 (Chapitre V), les différents fluides sont filtrés en mode Interne/Externe pendant 3600 secondes (Figure V-11). La solution de BSA induit une forte augmentation de la résistance formée. $R_{F(n)}$ devient supérieur à R_m dans les 10 premières secondes pour atteindre une valeur de $3 \times 10^{11} \text{ m}^{-1}$ ($dR_{F(n)}/dt = 1 \times 10^9 \text{ m}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1}$). L'augmentation ralentit ensuite jusqu'à $4,2 \times 10^{11} \text{ m}^{-1}$ ($dR_{F(n)}/dt = 8 \times 10^7 \text{ m}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1}$), pour atteindre un état stationnaire à 1800 secondes ($dR_{F(n)}/dt = 3 \times 10^7 \text{ m}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1}$). Concernant la suspension de levures réhydratées, l'augmentation de $R_{F(n)}$ est linéaire jusqu'à 3000 secondes ($dR_{F(n)}/dt = 1 \times 10^8 \text{ m}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1}$) puis atteint un état stationnaire jusqu'à la fin de l'expérimentation ($dR_{F(n)}/dt = 2 \times 10^7 \text{ m}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1}$).

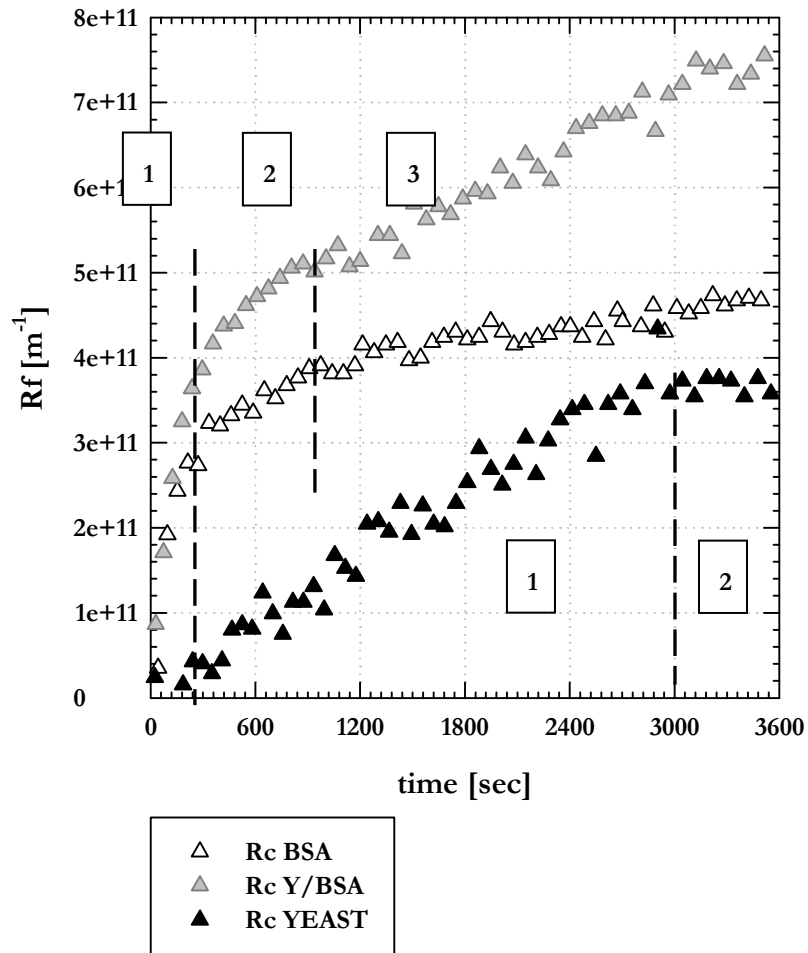


Figure V -11. Evolution de la résistance formée au cours de chaque cycle de filtration en fonction du temps, pour levures, BSA et Levures/BSA, en modes de filtration Interne/externe et Externe/interne.

On remarque donc ici une forte influence de la BSA sur le colmatage du mélange Levures/BSA lors de la première phase. La deuxième phase correspond à une contribution cumulée de la BSA et des levures et on peut supposer qu'un colmatage résiduel particulaire commence à apparaître (Figure V-12). Finalement, lors de la troisième phase, la chute d'efficacité de rétrofiltration induit par le colmatage irréversible dû à l'adsorption des composés solubles organiques provoque une forte augmentation linéaire de $R_{F(n)}$. Celle-ci peut être liée au colmatage résiduel particulaire. En effet les vitesses de colmatage $dR_{F(n)}/dt$ de la suspension de levures et du mélange BSA/levures sont sensiblement égales : $dR_{F(n)}/dt = 1 \times 10^8 \text{ m}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1}$.

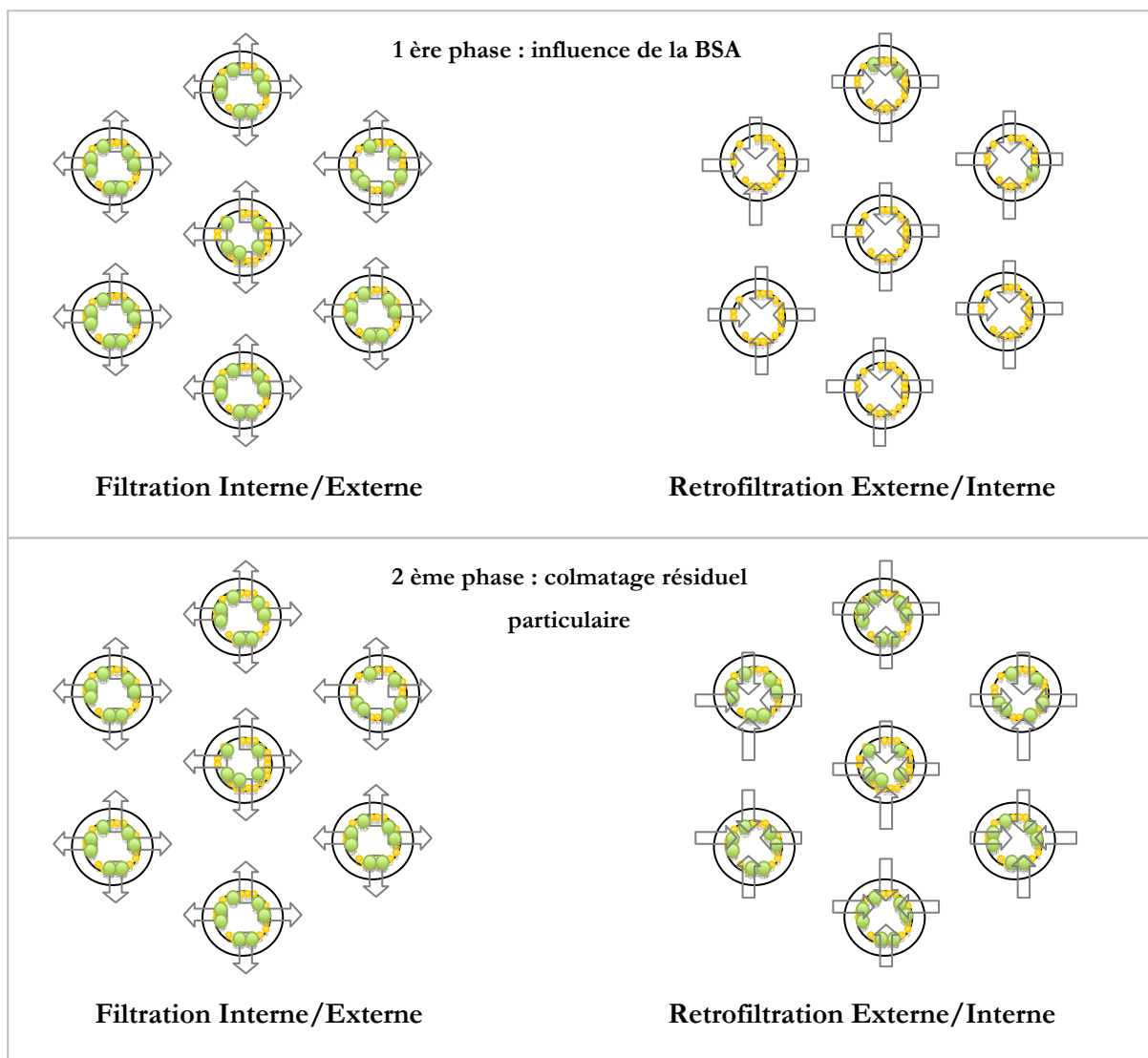


Figure V-12. Représentation schématique du phénomène de colmatage/rétrofiltration en mode Interne/Externe pour le module 1400 fibres. (vert : particules, jaune : BSA et agrégats BSA)

V.5.1.1 Bilan intermédiaire sur l'utilisation du module 1400 fibres.

L'utilisation d'un module de compacité plus faible ($\Phi=0,4$) introduit la notion d'éloignement des fibres. Les performances de filtration montrent un flux net en Externe/interne inférieur au flux net en Interne/Externe. On observe également une diminution du flux net de filtration normalisé beaucoup plus marquée en interne/externe lors d'une première phase, qu'en mode Externe/Interne, pour atteindre une phase pseudo stationnaire. Ceci semble lié à un colmatage résiduel dont la composante irréversible induit une forte augmentation de la résistance formée au cours de chaque cycle de filtration dans les premières minutes de filtration. La résistance du dépôt étant importante, le cycle de rétrofiltration suivant est en partie inefficace induisant une accumulation d'un colmatage résiduel particulière dans les fibres, constitué de levures et, potentiellement de macrosolutés et agrégats de BSA.

V.6 Comparaison et conclusion

La partie finale de ce chapitre vise à comparer ces deux types de modules et ainsi évaluer leurs performances de filtration en fonction du sens de filtration.

La Figure V -13 regroupe les flux nets et flux nets normalisés, pour les deux modules utilisés en fonction du temps et du sens de filtration.

Deux observations peuvent être faites :

- La première concerne le flux net: Le mode de filtration Externe/Interne présente des flux nets négatifs et bien inférieurs aux flux nets en mode de filtration Interne/Externe. En termes de performances intrinsèques globales des modules de filtration, le sens de filtration Interne/Externe semble plus indiqué.
- Concernant maintenant le flux net de filtration normalisé vis-à-vis du flux net initial à l'eau. Cette normalisation permet d'évaluer l'écart entre un flux net optimale (flux net à l'eau) et le flux net à l'instant t. Les performances de filtration du module présentant une forte compacité, et un nombre de fibres égal à 2800 sont excellentes et la diminution du flux reste inférieure à 20 % comparativement au flux initial. Concernant le module le plus lâche possédant 1400 fibres, la diminution maximale du flux net atteint 48 % et correspond au mode de filtration Interne/externe.

Les questions posées en début de chapitre étaient les suivantes :

1) Quelles sont les performances de filtration pour différentes PTM en mode de filtration Interne/Externe ? Quelles sont les performances de mélange dans le cas d'un composé d'intérêt potentiellement colmatant ?

Ces questions ont fait l'objet de l'article n°1 *Filtration characteristics of a Hollow fiber microfiltration membrane used in a specific membrane bioreactor*, publié en 2009 dans le journal *Chemical Engineering and Processing : Process Intensification*. Nous avons pu définir des performances de filtration maximales pour une PTM=0.8 bar en mode de filtration Interne/Externe permettant également un bon mélange entre les deux réacteurs traduit par un temps de mélange inférieur à 240 secondes.

4) Quel est l'impact du sens de filtration sur les performances du pilote pour un fluide modèle simulant un milieu de fermentation simple avec micro organismes?

Cette question a fait l'objet des parties 3 et 4. Nous avons pu mettre en évidence que le sens de filtration avait un impact sur les performances de filtration. De manière globale, le sens de filtration Interne/Externe présente des performances supérieures avec un flux net positif contrairement au flux net en Externe/interne. Ce dernier point est essentiellement à cause des différences de perméabilité de module en Interne/Externe et Externe/Interne.

5) Quelle compacité de module semble la plus performante pour le fluide modèle étudié ? et dans quel sens de filtration ? La compacité qui semble la plus performante semble être $\Phi=0.8$ avec 2800 fibres. Néanmoins, les performances du module lâche $\Phi=0.4$ en Externe/Interne comparé au flux initial semble égale.

Ces conclusions restent globales sur l'ensemble du module de filtration et les répartitions du dépôt formé ne sont pas prises en compte pour expliquer les phénomènes rencontrés dans ce chapitre. Aussi, le but du chapitre suivant sera de faire une confrontation et une conclusion englobant les résultats numériques présentés dans les articles présents dans les chapitre I et II et les résultats présentés dans ce chapitre.

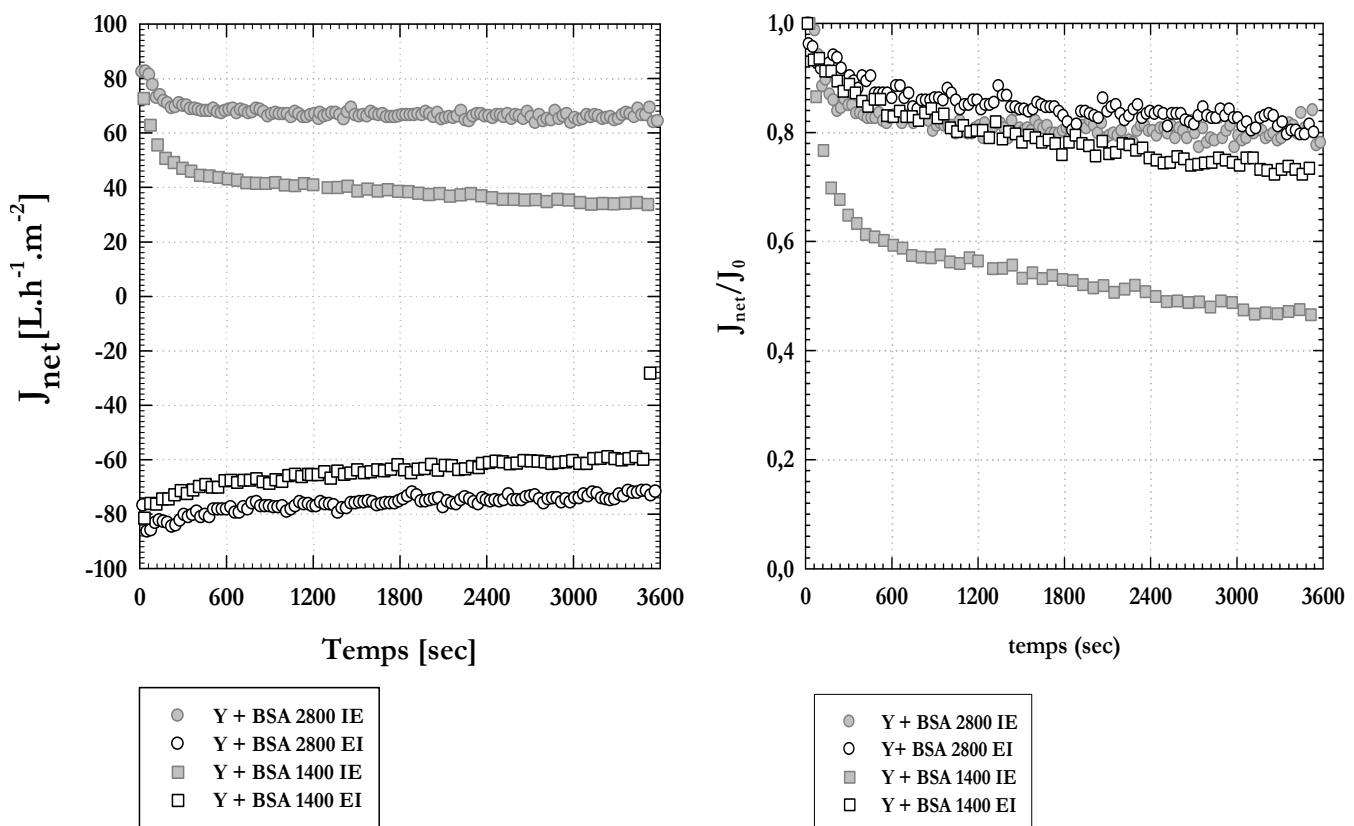


Figure V -13. Comparaison des flux nets et flux nets normalisés pour les deux modules utilisés en fonction du temps pour la suspension modèles levures/BSA.

Chapitre VI : Confrontation
« simulations/ approche expérimentale »,
discussion.

VI.1 Prise en compte de la formation du dépôt et du cycle de rétrofiltration.

La partie suivante a pour but de tirer parti des résultats numériques obtenus précédemment afin de les intégrer dans une réflexion plus globale sur procédé associant le cycle de filtration et de rétrofiltration.

VI.1.1 Evaluation de l'impact de la compacité sur un cycle entier filtration/rétrofiltration.

VI.1.1.1 Filtration Interne/Externe

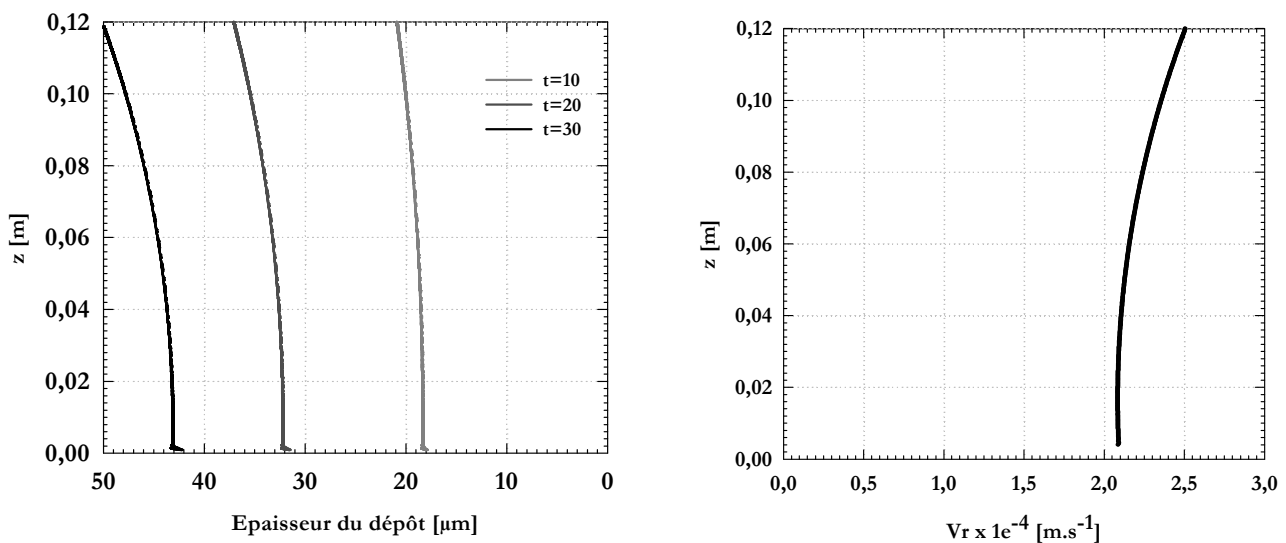


Figure VI-1. Répartition de l'épaisseur du dépôt (gauche) en Interne/Externe et vitesse de filtration en Externe/Interne pour une $\Phi=0.4$.

Les Figure VI-1 et Figure VI-2 reprennent des résultats décrits dans les chapitres III et IV respectivement pour des compacités de $\Phi=0,4$ et ($\Phi=0,8$). Le graphique de gauche représente la répartition spatiale du dépôt le long d'une fibre en mode de filtration Interne/Externe. La figure de droite représente la variation longitudinale de la vitesse de filtration axiale en mode Externe/Interne. Les chapitres III et IV ont permis de décrire l'écoulement de liquide au sein du module de filtration en fonction de la compacité, ainsi que les zones où le dépôt se formait de manière préférentielle.

Néanmoins, ces études se sont portées sur un cycle de filtration d'une durée maximale de 30 secondes.

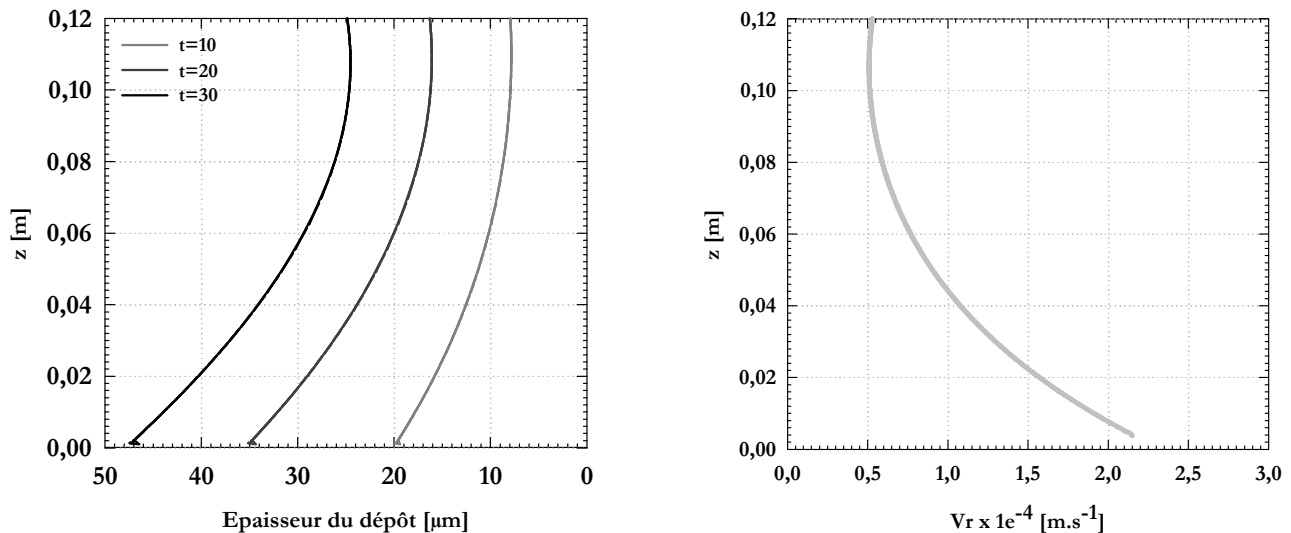


Figure VI-2. Répartition de l'épaisseur du dépôt (gauche) en Interne/Externe et vitesse de filtration en Externe/Interne pour une $\Phi=0.8$.

Ces profils peuvent être associés à une filtration Interne/Externe où le dépôt se formerait en fonction de contraintes liées à la géométrie du module suivie d'une rétrofiltration Externe/Interne. La confrontation de ces figures permet de proposer quelques conclusions:

La première porte sur l'efficacité de la rétrofiltration en lien avec la répartition de vitesse de liquide. En effet, lors de la phase de rétrofiltration, le liquide est filtré avec une vitesse suivant la répartition des pertes de charges à l'intérieur et à l'extérieur de la fibre. Pour une faible compacité ($\Phi=0,4$) (Figure VI-1), les vitesses de rétrofiltration seront plus élevées en haut du module conduisant à une meilleure élimination du dépôt en haut de la fibre. Au contraire, pour une forte compacité de ($\Phi=0,8$) (Figure VI-2), les vitesses de rétrofiltration seront plus élevées en bas du module ce qui peut permettre une meilleure élimination du dépôt à ce niveau. On est donc en présence d'un phénomène permettant d'éliminer de manière plus efficace sur une zone spécifique d'une fibre creuse, un dépôt qui y sera plus important.

Par ailleurs, les résultats expérimentaux ont montré une grande différence de performances de filtration entre le module compact et le module lâche, ce dernier présentant une chute de flux net normalisé très importante en mode de filtration Interne/Externe (Figure V-13).

On peut donc proposer une deuxième analyse, portant sur la nature du dépôt formé. Nous avons choisi dans le modèle numérique de dépôt présenté dans cette thèse, de fixer la porosité du dépôt et de le considérer comme incompressible. Néanmoins, cette incompressibilité est toute relative expérimentalement lorsque l'on s'intéresse aux dépôts de micro-organismes pouvant. En effet, ces dépôts peuvent posséder des propriétés de réarrangement des particules induisant une compressibilité et donc un changement de porosité. Le module lâche contient 1400 fibres, sa surface de filtration théorique interne est donc deux fois moins grande que pour le module de 2800 fibres présentant une compacité $\Phi=0,8$. Le volume de filtration prendra donc, théoriquement, deux fois plus de temps à passer du réacteur A au réacteur B. La quantité de matière apportée à la membrane est la même pour les deux configurations de modules, néanmoins, le dépôt se formera plus lentement, conséquences du débit plus faible. Ceci pourra être propice à un arrangement et une compaction différents des particules au sein du dépôt. Cette augmentation de la résistance du dépôt entraînerait une élimination incomplète du dépôt se traduisant par l'apparition d'une résistance résiduelle plus importante (Figure VI-3).

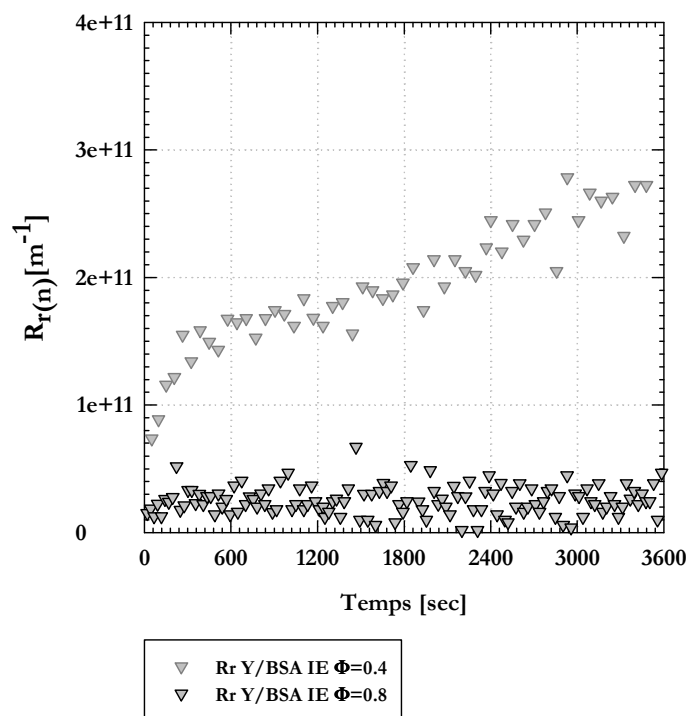


Figure VI-3. Résistance résiduelle pour le module $\Phi=0.4$ et $\Phi=0.8$ en mode de filtration Interne/Externe.

VI.1.1.2 Filtration Externe/Interne

Des hypothèses sur les mécanismes de colmatage et de décolmatage peuvent, de façon similaire, être formulées dans le cas d'une filtration Externe/Interne suivie d'un cycle de rétrofiltration Interne/Externe. La différence réside dans l'épaisseur du dépôt.

La première hypothèse correspond à l'efficacité de rétrofiltration. Le dépôt est réparti de manière homogène le long des fibres dans une configuration plus lâche $\Phi=0.4$ (Figure VI-4 gauche). La vitesse du liquide de rétrofiltration est plus importante vers le haut de la fibre, ce qui aboutirait à une meilleure élimination du dépôt à ce niveau (Figure VI-4 droite). Le dépôt formé présente une faible épaisseur comparativement au mode Interne/Externe et les vitesses de fluide en rétrofiltration restent élevées. On s'attend donc à une configuration plus performante, hypothèse pouvant être validée sur la figure V-13 montrant de très bonnes performances de filtration concernant le flux net normalisé.

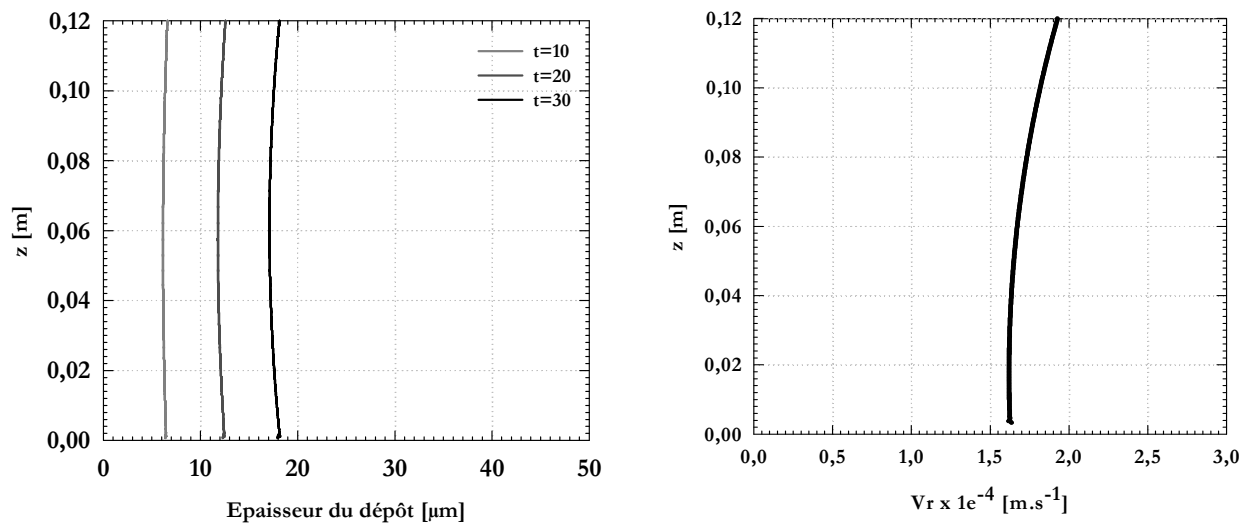


Figure VI-4. Répartition de l'épaisseur du dépôt (gauche) en Externe/Interne et vitesse de filtration en Interne/Externe pour une $\Phi=0.4$.

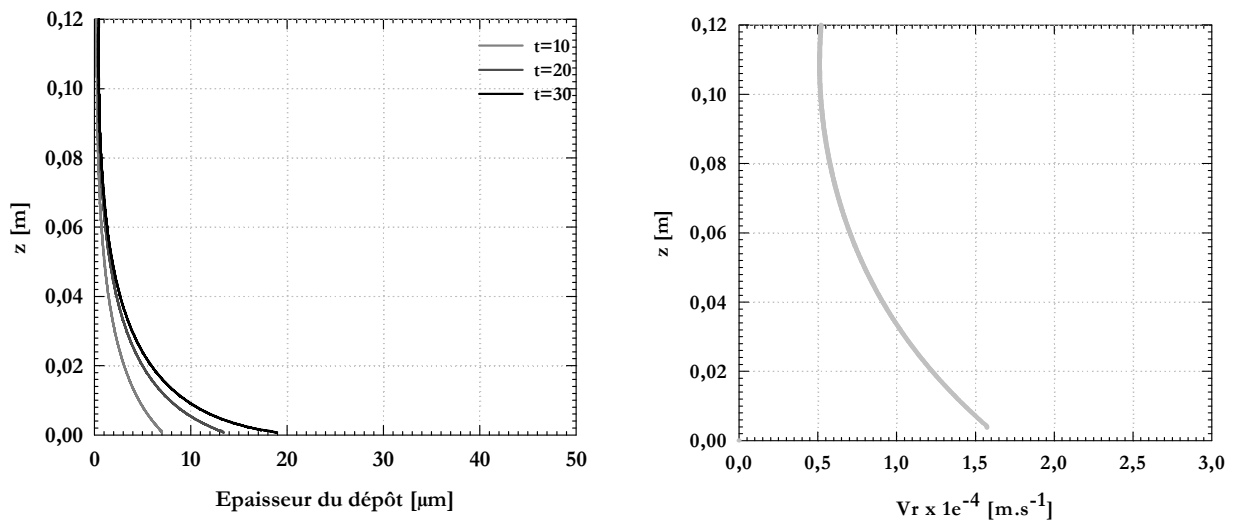


Figure VI-5. Répartition de l'épaisseur du dépôt (gauche) en Externe/Interne et vitesse de filtration en Interne/ Externe pour une $\Phi=0.8$.

Concernant la compacité plus forte (Figure VI-5), le dépôt se forme principalement sur la dernière moitié de la fibre, zone de plus forte vitesse de rétrofiltration. Le dépôt sera d'autant mieux éliminé car son épaisseur reste faible. Ceci est corrélé sur la Figure VI-6 présentant de très faible résistance résiduelle et la figure V-14 montrant de très bonnes performances de filtration concernant le flux net normalisé.

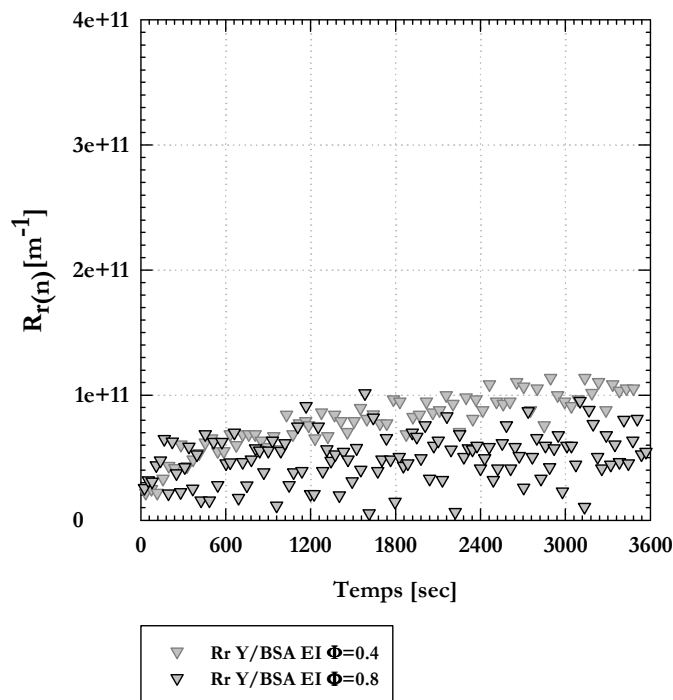


Figure VI-6. Résistance résiduelle pour le module $\Phi=0,4$ et $\Phi=0,8$ en mode de filtration Interne/Externe.

Les études expérimentales ont porté sur des fluides modèles biologiques permettant de balayer un certain nombre de paramètres opératoires et d'en différencier les optima de fonctionnement. Néanmoins, un milieu de culture de micro organismes présente des caractéristiques complexes, tant du point de vue de la taille des micro-organismes que des composés solubles présents dans le milieu.

VI.2 Application aux milieux biologiques réels

En raison de problèmes de conception sur certains modules, une seule configuration a pu être étudiée : une filtration d'un milieu de culture YEM de *Yarrowia lipolytica* en phase stationnaire de culture réalisé sur le module 1400 fibres en mode Externe/Interne à 0,8 bar.

Cette seule expérience, ne permet pas comparer l'impact des différents modes de filtration et les différentes compacités, mais peut donner un éclairage sur les performances du pilote en présence de ce type de fluide complexe.

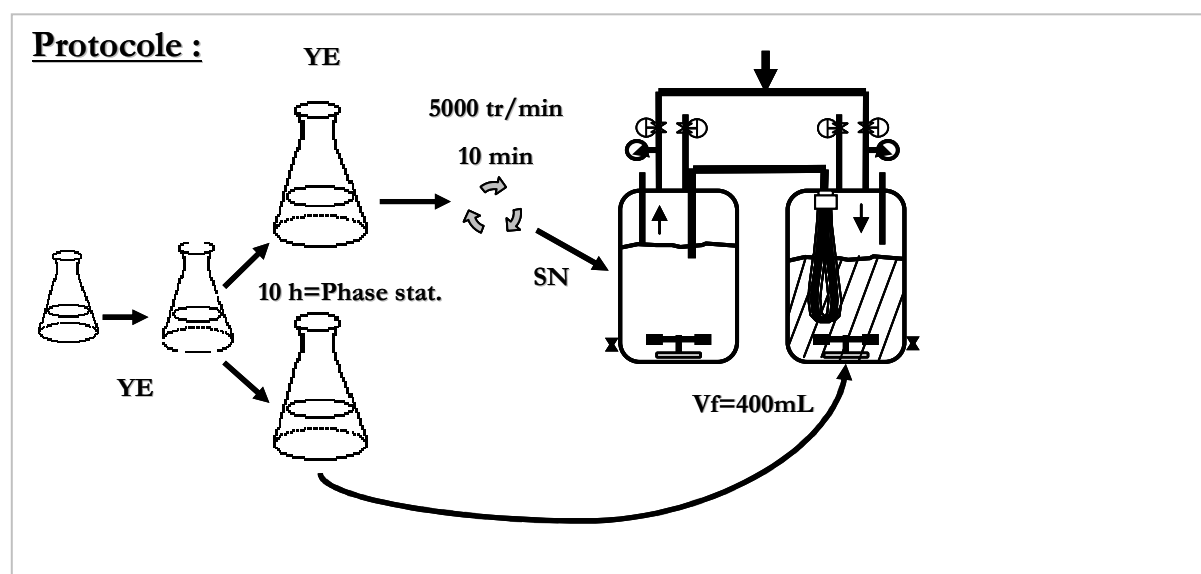


Figure VI-7. Protocole suivi pour l'évaluation des performances de filtration d'un milieu de culture de *Yarrowia lipolytica* en phase stationnaire de culture.

VI.2.1 Filtration d'un milieu de culture de *Yarrowia lipolytica* en phase stationnaire de culture : Evaluation des performances du pilote en conditions semi réelles.

Nous nous proposons ici de tester les performances de filtration en conditions semi-réelles comme décrit au chapitre matériels et méthodes II-3-2-5 et illustré sur la Figure VI-7.

La Figure VI-8 représente l'évolution du flux net de filtration en fonction du temps sur 1 heure de fonctionnement du pilote. Cette expérience est réalisée sur le module de faible capacité comportant 1400 fibres. Sur le profil obtenu (Figure VI-8), trois zones peuvent être distinguées. La première zone correspond aux premières 300 secondes pendant laquelle flux net de filtration chute rapidement de 22 l.h⁻¹.m⁻². Durant la seconde phase qui s'étend jusqu'à 1800 secondes la chute de flux se ralentit pour atteindre une troisième zone stationnaire où le flux net a une valeur de 20 l.h⁻¹.m⁻².

Lors de cette expérimentation, nous avons voulu placer le pilote dans des conditions de filtration défavorables: en effet, la phase stationnaire de croissance correspond à un milieu de culture à forte concentration en levure et comportant dans le milieu dispersant des composés, des déchets et débris cellulaires potentiellement colmatants.

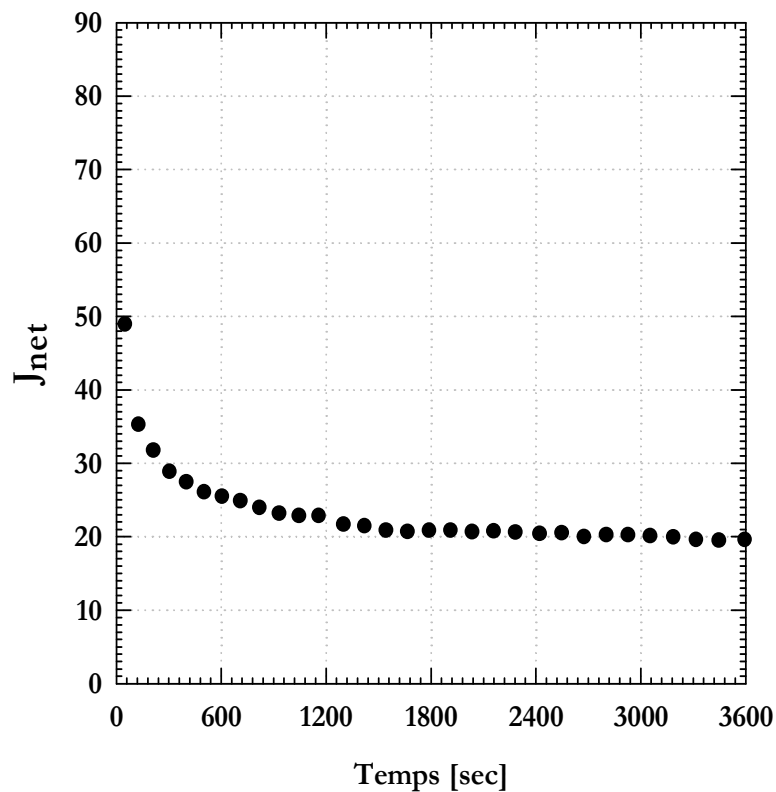


Figure VI-8. Evolution du flux net de filtration en fonction du temps pour la filtration d'un milieu de culture de *Yarrowia lipolytica* en phase stationnaire de croissance.

La Figure VI-9 représente l'évolution de la résistance du dépôt formée lors du cycle de filtration et la résistance éliminée lors du cycle de rétrofiltration. Ce résultat peut paraître surprenant car l'évaluation des résistances montre que la résistance éliminée R_e très supérieure à la résistance formée. En effet, si l'on se réfère à la figure II-6, la résistance éliminée devrait être inférieure ou égale à la résistance formée.

En considérant une filtration par dépôt de particules en surface de la membrane lors du cycle de filtration, la membrane retiendra toutes les particules de diamètres supérieurs à la taille de ses pores. Le perméat en résultant sera dépourvu de ces dernières. Si maintenant le perméat est utilisé comme liquide de rétrofiltration, il doit premièrement traverser la membrane de résistance R_m , puis, pendant cette période initiale du cycle de rétrofiltration, éliminer une partie de la couche de particules colmatantes. Après cette période initiale, le liquide traverse la membrane à travers ces zones « nettoyées ». Cet écoulement peut aussi éliminer ou éroder une petite partie des espèces colmatantes présentes en périphérie de ces zones dites « nettoyées ». Néanmoins, si les espèces colmatantes sont partiellement adhésives, cette partie du cycle de rétrofiltration ne permet plus de les éliminer. Lors du cycle de filtration suivant, le flux initial de filtration est supérieur à celui précédant la rétrofiltration, mais inférieur au flux de filtration de la membrane propre.

Maintenant, en considérant un cycle de rétrofiltration avec un perméat chargé en particules, les phénomènes deviennent un peu plus complexes. En effet, il y a apparition d'une résistance supplémentaire que l'on peut nommer résistance du dépôt de rétrofiltration. Celle-ci intervient dès les premiers instants du cycle. Une accumulation de particules en surface, induit une augmentation de la résistance au fluide du duo membrane + dépôt de rétrofiltration. Le flux rétrofiltré sera donc plus faible et sa capacité d'élimination d'espèces colmatantes sur la surface du cycle de filtration, sera diminuée.

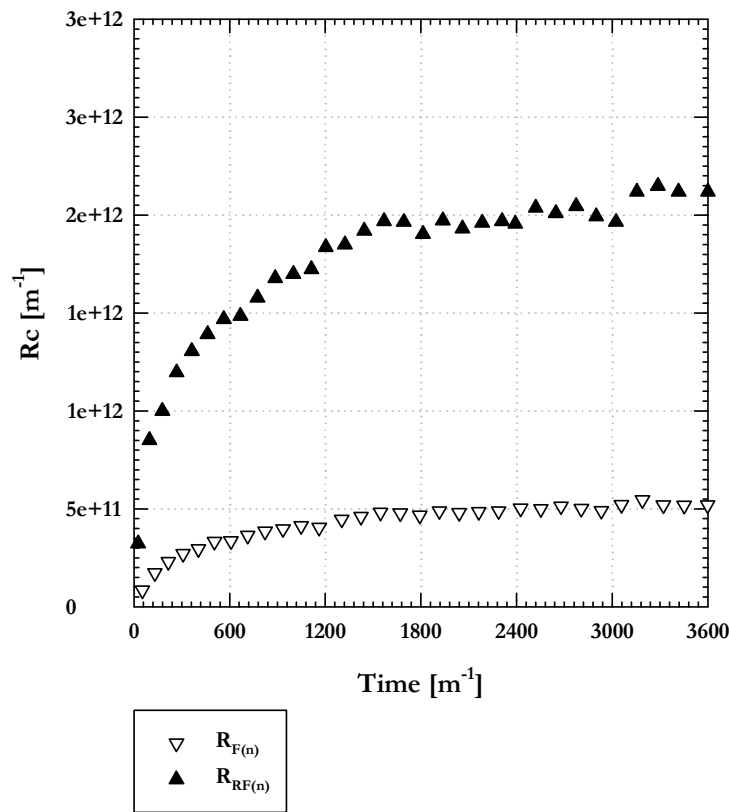


Figure VI-9. Evolution des résistances de filtration et de rétrofiltration en fonction du temps pour la filtration d'un milieu de culture de *Yarrowia lipolytica* en phase stationnaire de croissance.

Si l'on considère la Figure VI-9, la résistance formée lors du cycle de filtration $R_{f_{EI}}$ ajoutée à la résistance présente sur la face « rétrofiltration » R_{d_I} , cette somme reste inférieure à la résistance formée lors du cycle de rétrofiltration $R_{rf_{IE}}$ ajoutée à la résistance présente sur la face « filtration » R_{d_E} : $R_{f_{EI}} + R_{d_I} < R_{rf_{IE}} + R_{d_E}$.

Ce phénomène de colmatage des deux faces de la membrane induit donc des résistances très élevées induisant de grande différence à celles obtenues lors de l'utilisation de fluides modèles levures/BSA. La valeur maximale de la résistance formée $R_{F(n)}$ lors de l'utilisation de ce type de fluide est $2 \cdot 10^{11} \text{ m}^{-1}$ alors que pour ce fluide biologique réel, les valeurs sont de l'ordre de $1 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-1}$.

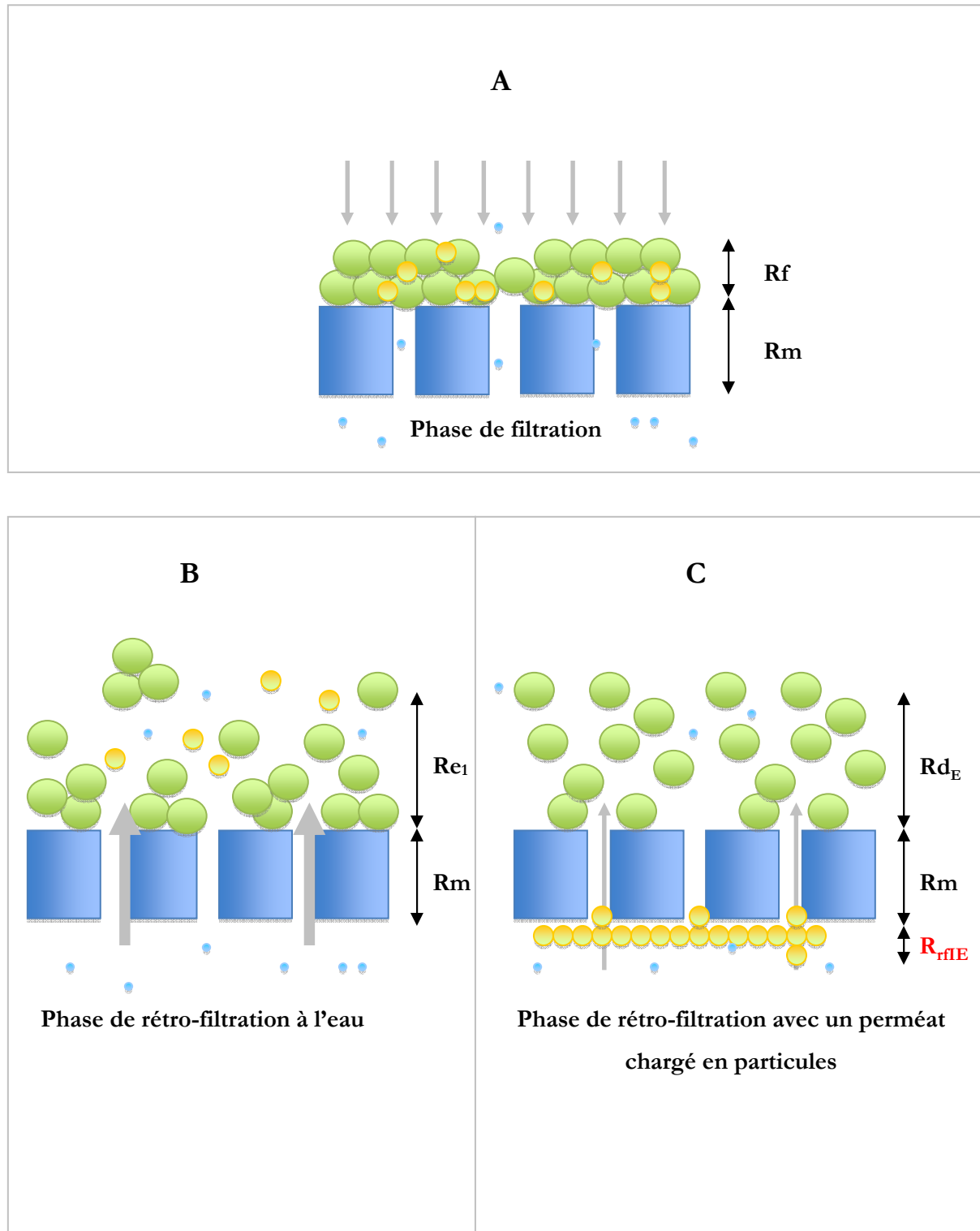


Figure VI-10. Représentation schématique du colmatage particulaire lors de la phase de filtration (A), et son élimination lors de la phase de rétrofiltration. (B) et (C).

VI.3 Impact du dépôt sur le temps d'homogénéisation.

L'approche présentée maintenant consiste à prendre en compte la diminution du temps d'inversion de cycle de filtration/rétrofiltration due la formation d'un dépôt résiduel et de l'introduire dans le modèle d'homogénéisation décrit au chapitre V.

Ainsi débit F sortant et entrant dans chacun des réacteurs au bout de 3600 sec lors de la filtration du mout de fermentation de *Yarrowia lipolytica* est introduit dans le modèle et le pourcentage d'homogénéisation est tracé en fonction du temps. Ceci reste sous l'hypothèse d'un composé traversant librement la membrane et n'étant pas retenu par le dépôt résiduel.

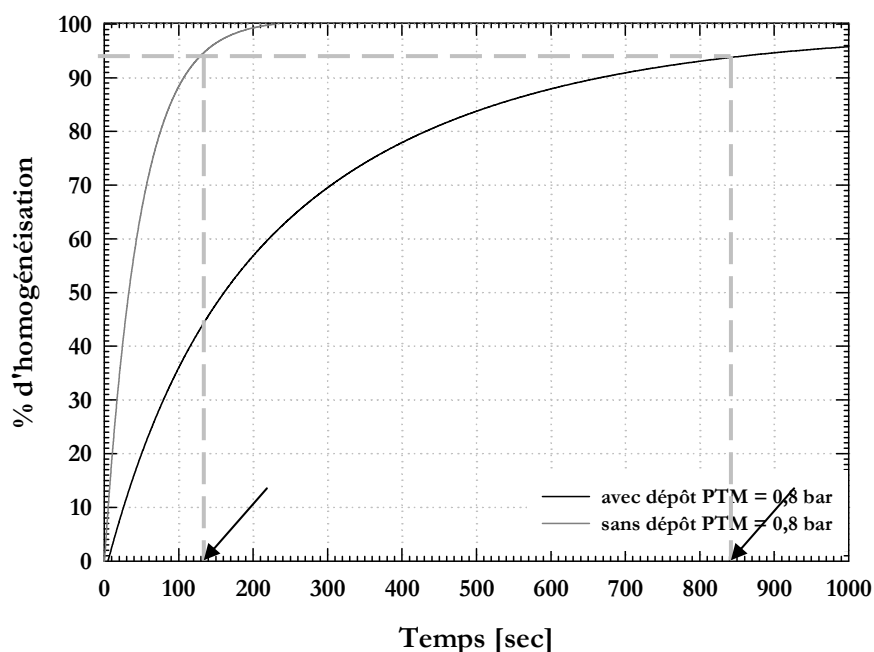


Figure VI-11. Evolution du % d'homogénéisation en fonction du temps pour un composé traversant librement la membrane

De manière logique, l'impact du dépôt induit une augmentation du temps d'homogénéisation comparativement à une membrane propre. Si l'on se réfère à la figure I-2 du chapitre de synthèse bibliographique, le temps d'homogénéisation obtenu théoriquement avec une membrane colmatée par *Yarrowia*, se retrouve dans la zone de temps du mécanisme par lequel le micro-organismes répond à ce changement. En d'autres termes, les vitesses de relaxation du mécanisme et les changements dans l'environnement sont comparables. L'état du mécanisme n'est pas lié directement aux conditions environnantes considérées et sa cinétique d'adaptation doit être considérée.

L'évolution des caractéristiques du milieu de culture peuvent donc induire une grande variation du temps de filtration et du temps de rétrofiltration comme décrit au paragraphe précédent. Selon le type de micro-organismes et le type de milieu de culture, leur capacité à être filtré, autrement dit la filtrabilité, sera elle aussi complètement différente. En effet, comme le montre le Tableau VI-1 le paramètre « résistance spécifique » $\alpha.C$, évalué en filtration frontale (paragraphe II-4.4) pour deux micro-organismes modèles en fin de phase de culture, diffère en fonction des micro-organismes considérés, que ce soit pour le milieu entier (micro-organismes + milieu de culture) ou pour le surnageant.

Tableau VI-1. Résistance spécifique pour différents micro-organismes cible (Cf annexe 5 et 6).

	Milieu entier	Surnageant (5000 tr/min)
$\alpha.C$ <i>Yarrowia lipolytica</i> <i>(Milieu YEM, $t=10h$)</i>	$9,62 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$	$4,81 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-2}$
$\alpha.C$ <i>Lactococcus lactis</i> <i>(Milieu YEM, $t=10h$)</i>	$3,85 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$	$1,92 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$

Cette résistance spécifique traduit la filtrabilité d'un fluide vis-à-vis de la membrane de microfiltration et est plus élevée pour un fluide présentant un pouvoir colmatant plus important. Le temps d'inversion du cycle filtration/rétrofiltration sera donc plus élevé et donc le temps d'homogénéisation sera plus long.

Si l'on se place maintenant dans un contexte écologique plus large et que l'on considère ces deux micro-organismes en co-culture dans le pilote. Compte tenu des mécanismes influant sur les performances du pilote décrits dans cette thèse, l'utilisateur devra faire un choix concernant, à la fois le sens de filtration imposé à un micro-organisme donné, et la filtrabilité du milieu de culture défini par la résistance spécifique du milieu vis-à-vis d'une membrane donnée.

VI.4 Conclusions.

L'approche de ce chapitre consistait à confronter, les résultats et conclusions obtenus lors des deux approches numériques, et les résultats obtenus expérimentalement. Ceci afin d'évaluer et de comprendre les différents phénomènes liés au transfert et au colmatage dans le double bioréacteur à membranes.

La compacité des fibres dans le module a un rôle indiscutable sur les performances de filtration et rétrofiltration. Ces performances sont liées à la répartition des pertes de charges dans les fibres, ainsi qu'à l'extérieur. L'inhomogénéité de ces pertes de charges est directement liée au confinement des fibres creuses au sein du module et donc à sa compacité. Si les articles n°1 et 2 prennent en compte uniquement la phase de filtration dans un sens donné, la confrontation des résultats de formation du dépôt et de rétrofiltration nous permet néanmoins de proposer un certain nombre d'hypothèses pouvant être corrélées aux performances expérimentales de filtration.

Le sens de filtration Interne/Externe provoque la formation d'un dépôt plus important comparativement au sens Externe/Interne ce qui pénalise son élimination correcte lors du cycle de rétrofiltration suivant. Ce dernier point peut être attribué à l'existence d'un colmatage résiduel particulière décrit dans le chapitre V et quantifié par la résistance résiduelle. En effet, cette résistance résiduelle, traduisant les performances du pilote à maintenir un bon « degré » de rétrofiltration, sera d'autant plus faible que J_{net}/J_0 sera élevé (

	<i>S. cerevisiae</i> +	<i>S. cerevisiae</i> +	<i>S. cerevisiae</i> +	<i>S. cerevisiae</i> +	<i>Y. lipolytica</i>
	BSA	BSA	BSA	BSA	
	2800 I/E	2800 E/I	1400 I/E	1400 E/I	1400 E/I
$\alpha.C [m^{-2}]$	$4. 10^{10}$	$4. 10^{10}$	$4. 10^{10}$	$4. 10^{10}$	$9,62 10^{14}$
$J_{\text{net}} 3600 \text{ s}$					
$[l.h^{-1}.m^{-2}]$	65	72	28	16	20
J_{net} / J_0					
3600 s	0,8	0,8	0,46	0,74	0,4
$[-]$					
$R_{F(n)} 3600 \text{ s}$	$1,5 10^{11}$	$2. 10^{11}$	$2,7. 10^{11}$	$2. 10^{11}$	$5. 10^{11}$

$[m^{-1}]$					
$R_{r(n)} 3600 \text{ s}$					
$[m^{-1}]$	$5. 10^{10}$	$2. 10^{10}$	$2,7 10^{11}$	$1. 10^{11}$	X

Tableau VI-2).

Cette analyse nous permet donc de proposer des recommandations de fonctionnement du pilote relatives au sens de filtration, en fonction des caractéristiques des fluides à séparer. Néanmoins, les particules considérées dans les approches numériques restent des objets idéaux présentant une sphéricité parfaite et homogène et une taille proche des levures utilisées expérimentalement. La compressibilité des dépôts de particules, que ce soit sur membrane plane ou sur et/ou dans une fibre creuse reste un sujet d'intérêt mais particulièrement complexe. Aussi, l'autopsie de membranes pourrait être une perspective intéressante pour la validation de ces travaux numériques tant du point de vue de la répartition spatiale du dépôt, que de leur compressibilité. Ce travail d'autopsie de membrane a été l'objet d'une réflexion que nous n'avons pas pu poursuivre expérimentalement. En effet les modules membranaires ne sont pas conçus pour que l'utilisateur puisse accéder aux fibres de manière facile. Des modules membranaires pouvant être contenus dans des carters inox amovibles ont ainsi été conçus permettant à l'utilisateur un démontage facile et une désolidarisation de la partie fibres creuses.

Concernant la filtration de milieu biologique « réel », il serait prématuré de donner des conclusions sur les performances de filtration en fonction du sens de filtration sur ce type de fluide biologique. Néanmoins l'évaluation du flux net et des résistances dans le sens inverse (filtration interne/externe, rétrofiltration Externe/Interne) reste inévitable. Dans ces conditions, et avec les paramètres « volume de filtration » et « pression transmembranaire » optimisés, le flux net de filtration diminue de 40 % par rapport au flux net initial (

J_{net} / J_0					
3600 s	0,8	0,8	0,46	0,74	0,4
$[-]$					
	<i>S. cerevisiae</i> +	<i>S. cerevisiae</i> +	<i>S. cerevisiae</i> +	<i>S. cerevisiae</i> +	<i>Y. lipolytica</i>
$R_{F(n)} 3600 \text{ s}$	BSA	BSA	BSA	BSA	
$[m^{-1}]$	2800 E/I	2800 E/I	1400 E/I	1400 E/I	1400 E/I
$\alpha.C [m^{-2}]$	$4. 10^{10}$	$4. 10^{10}$	$4. 10^{10}$	$4. 10^{10}$	$9,62 10^{14}$
$R_{net} 3600 \text{ s}$					
$[m^{-1}]$	$5. 10^{10}$	$2. 10^{10}$	$2,7 10^{11}$	$1. 10^{11}$	X
$[l.h^{-1}.m^{-2}]$	65	72	28	16	20

Tableau VI-2). Nous pouvons uniquement supposer que cette chute de flux ne pourra être que plus faible lors de phase de croissance microbienne car durant ces phases, les concentrations en particules et composés solubles inférieures à celles trouvées en phase stationnaire.

Tableau VI-2. Récapitulatif des différents paramètres mesurés pour les différents sens de filtration et fluides étudiés

	<i>S. cerevisiae</i> + BSA 2800 I/E	<i>S. cerevisiae</i> + BSA 2800 E/I	<i>S. cerevisiae</i> + BSA 1400 I/E	<i>S. cerevisiae</i> + BSA 1400 E/I	<i>Y. lipolytica</i> 1400 E/I
$\alpha.C$ [m ⁻²]	4. 10 ¹⁰	4. 10 ¹⁰	4. 10 ¹⁰	4. 10 ¹⁰	9,62 10 ¹⁴
J_{net} 3600 s [l.h ⁻¹ .m ⁻²]	65	72	28	16	20
J_{net} / J_0 3600 s [-]	0,8	0,8	0,46	0,74	0,4
$R_{F(n)}$ 3600 s [m ⁻¹]	1,5 10 ¹¹	2. 10 ¹¹	2,7. 10 ¹¹	2. 10 ¹¹	5. 10 ¹¹
$R_{r(n)}$ 3600 s [m ⁻¹]	5. 10 ¹⁰	2. 10 ¹⁰	2,7 10 ¹¹	1. 10 ¹¹	X

Conclusion générale.

La compréhension du fonctionnement des écosystèmes microbiens de manière qualitative et quantitative, et en particulier l'identification et l'étude des mécanismes qui gèrent les interactions entre espèces est l'un des aspects essentiels de l'écologie microbienne. Une meilleure compréhension des interactions permet de maîtriser les cultures microbiennes si celles-ci sont néfastes, ou d'optimiser leur exploitation si elles sont bénéfiques. Dans le cadre de cette problématique, Salgado *et al.* ont proposé en 1998 un double bioréacteur couplé à des membranes pour l'homogénéisation de deux milieux liquides contenant des micro-organismes différents. L'idée de base est de permettre à deux souches de partager le même environnement tout en les maintenant séparées à l'aide d'une membrane perméable retenant sélectivement les microorganismes. Néanmoins, le facteur limitant de ce procédé réside principalement dans le colmatage induit par le dépôt des micro-organismes sur le module de filtration.

Le problème posé par un procédé impliquant un cycle de filtration suivi d'un cycle de rétrofiltration sur une fréquence relativement haute reste très complexe. La difficulté ici, réside dans la prise en compte des écoulements et de la formation du dépôt de filtration en fonction du sens de filtration et également en fonction de la compacité du module. L'apport de l'approche numérique a été essentiel dans ce travail de thèse et a permis de balayer un certain nombre de paramètres géométriques et physiques. Dans un souci de clarté, un certain nombre de ces paramètres ont été étudiés mais ne figurent pas dans cette thèse : diamètre de la fibre, épaisseur de paroi poreuse, sa perméabilité, concentration en particules, leur taille, etc. Néanmoins, un certain nombre d'observations et d'hypothèses permettent de guider la bonne conduite de ce procédé.

Les conclusions et recommandations sur le sens de filtration sont de deux ordres :

- Premièrement, la capacité du module de filtration à maintenir un bon degré de rétrofiltration est évaluée par le flux net normalisé nous permettant d'évaluer l'écart entre le flux net initial à l'eau (flux net optimal dans une condition donnée) et le flux net à l'instant t. Ainsi, le sens de filtration Externe/interne semble apporter de meilleures performances de rétrofiltration, se traduisant numériquement par la formation d'un dépôt plus faible en épaisseur, plus inhomogène dans sa répartition le long de la fibre et étalé sur une surface plus grande.
- Deuxièmement, les performances globales du pilote en fonction du sens de filtration sont évaluées par le flux net et celui-ci est toujours supérieur en mode de filtration Interne/Externe par rapport au mode Externe/Interne. Ce phénomène est lié aux grandes différences de perméabilité existant entre les modes de filtration induisant de grandes différences de flux de filtration.

Par définition, une co-culture microbienne présente deux ou plusieurs micro-organismes dans un même milieu de culture. La difficulté réside dans la prédiction de l'évolution temporelle des comportements microbiens et des caractéristiques des milieux de cultures (biomasse, surnageant), compte tenu des interactions existant entre tous les paramètres.

Deux approches peuvent être distinguées en fonction des objectifs de l'utilisateur. Premièrement, le but est de maintenir de bonnes performances de rétrofiltration tout au long de la culture microbienne.

En supposant que l'un des deux micro-organismes étudiés possède de fortes capacités au colmatage (concentrations cellulaires élevées et/ou synthèse de composés solubles colmatants), la principale difficulté est de fournir de bonnes performances de rétrofiltration, permettant un bon transfert des molécules d'intérêt. Le sens de filtration externe/interne permettant un décolmatage plus efficace devra donc être réservé à ce micro-organisme. Si maintenant, le but est la capacité d'homogénéisation et si les cultures étudiées présentent de faibles propriétés colmatantes, il faudra considérer le mode interne/externe qui permet un flux net très supérieur à celui retrouvé en externe/interne. Néanmoins, les études effectuées durant ce travail de thèse ont été réalisées avec un micro-organisme d'un seul côté et ces considérations doivent être approfondies en étudiant l'impact de deux micro-organismes en culture de chaque côté de la membrane.

L'étude numérique de l'augmentation de la compacité du module induit de fortes variations de répartitions du dépôt le long de la fibre et l'épaisseur en mode Externe/Interne reste inférieure à celle retrouvée en Interne/Externe. De plus, les vitesses de rétrofiltration restent supérieures symétriquement à la zone de forte épaisseur du dépôt. La recommandation précédente reste valable et le module compact devient un système probablement plus performant que le module plus lâche en termes de pérennité des performances de rétrofiltration.

Cependant, ces résultats n'apportent une information que sur les phénomènes se déroulant lors du premier cycle de filtration et sur un fluide de rétrofiltration dépourvu de particules. La perspective de ce travail serait une prise en compte des forces nécessaires à éliminer le dépôt formé lors du cycle de filtration permettant d'évaluer l'épaisseur du dépôt après le cycle de rétrofiltration. L'évaluation du profil et de la résistance du dépôt présents en début de cycle de filtration suivant, permettrait de prendre réellement en compte l'impact d'une fréquence élevée de filtration/rétrofiltration sur la répartition du dépôt et donc sur les performances globales de filtration de la fibre et/ou du module. La deuxième perspective découle de la précédente. En effet, ayant pris connaissance de cette répartition du dépôt en fonction du nombre de cycle de filtration, l'impact de la compacité sur cette répartition serait une avancée non négligeable dans l'optimisation du module.

L'utilisation optimale du double bioréacteur à membranes nécessitera donc de faire certains compromis ; Un milieu très peu colmatant où la dynamique de mélange est le facteur limitant de la co-culture microbienne, devra être filtré dans le sens Interne/Externe. Par contre si le milieu présente une forte capacité de colmatage, l'utilisateur devra faire un compromis entre la dynamique du mélange et une capacité de rétrofiltration et d'élimination du dépôt importante, afin de poursuivre sur une plus longue durée la culture et donc choisir plutôt un sens de filtration Externe/Interne. La filtrabilité des mouts de fermentation en fonction du temps de culture devra donc être un élément guidant les choix d'utilisation.

Concernant les fluides biologiques réels, certains problèmes techniques de conception des modules de filtration ne nous ont pas permis d'aller au bout des objectifs fixés. Néanmoins, certaines considérations peuvent être faites:

- Une réflexion doit être envisagée sur la conception du module de filtration et principalement sur la résistance des résines (qui permettent l'empotage) vis-à-vis de l'autoclavage permettant de stériliser l'installation. Ceci reste le problème principal rencontré lors de ce travail. La solution envisageable est un système permettant un autoclavage du module désolidarisé du réacteur, pouvant être remonté ultérieurement et qui permet ainsi les modifications des matériaux à la chaleur sans que l'étanchéité entre les éléments en pâtisse.
- L'utilisation facile du pilote passe par un nettoyage aisé et une diminution des zones mortes. Ces zones mortes sont présentes essentiellement entre les fibres du module de filtration et augmente avec le nombre de fibres. Le choix du module de filtration doit donc également être pris en compte et ceci reste également un compromis supplémentaire.
- Le pilote a pour but de faciliter l'étude des cultures mixtes de micro organismes en disposant de deux réacteurs qui permettent des cultures séparées à l'aide du module de filtration. La perspective du travail entamé sur les fluides biologiques réels est la véritable culture de deux souches de micro organismes dans chacun des réacteurs et d'en étudier les propriétés de transfert sur la base des conditions optimales de filtration déterminées dans ce travail. Ceci devra être élaboré en prenant en compte la filtrabilité des mouts de fermentation qui dépend à la fois du milieu de culture utilisé et à la fois du micro-organisme étudié.

L'état actuel d'avancement de ces travaux se situe au niveau de la caractérisation et de l'optimisation du double bioréacteur à membranes qui a donné entière satisfaction sur les

performances de filtration avec les différents fluides testés. Les fluides biologiques réels n'ont cependant pas été étudiés de manière systématique. Néanmoins, le double bioréacteur à membranes reste un outil original dont l'utilisation laisse entrevoir de nombreuses perspectives.

Annexes

Annexe 1 : Double bioréacteur à membranes immergées.

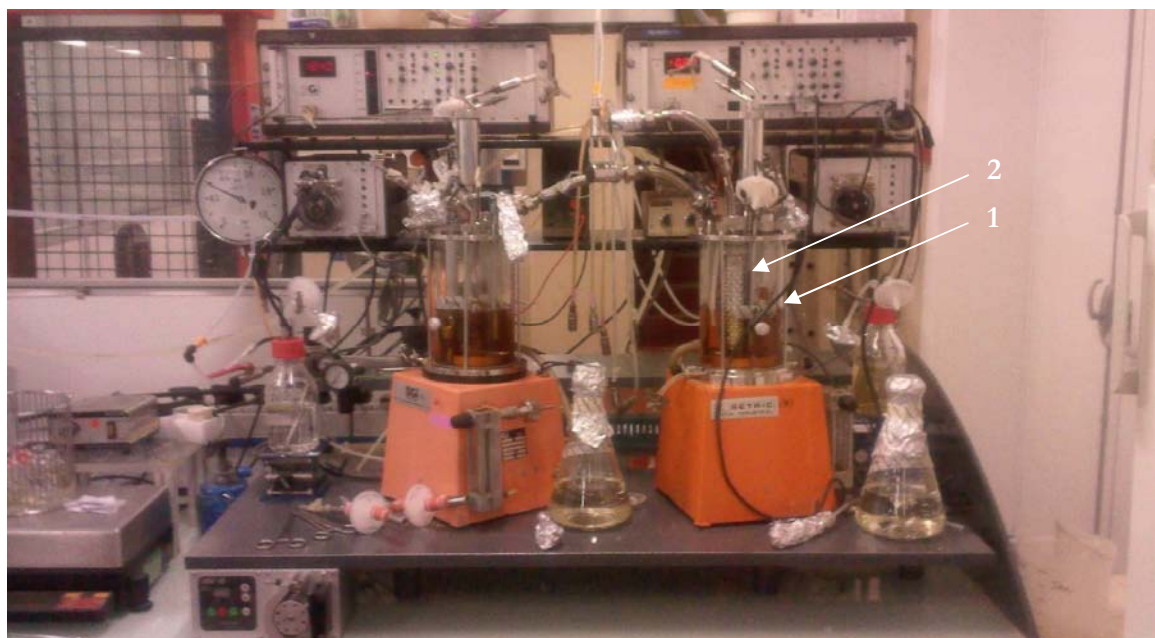


Figure 12. Photo du pilote double bioréacteur à membranes immergées

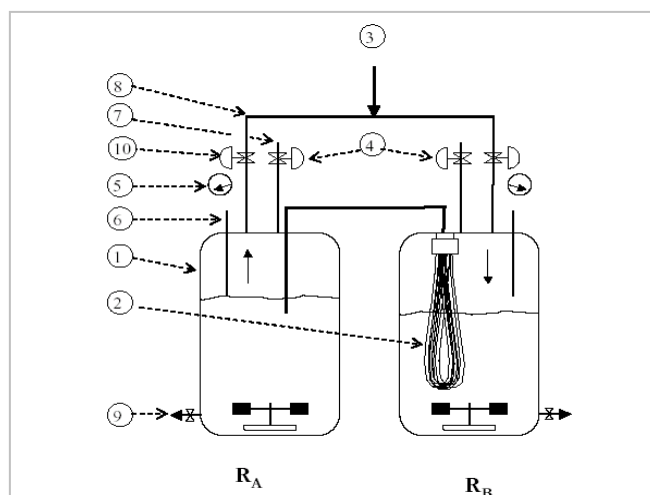


Figure 13. Représentation schématique du double bioréacteur à membranes : 1 : fermenteur Setric 2L, 2 : module membranaire de filtration, 3 : Air comprimé, 4 : Electrovanne de mise à la pression atmosphérique, 5 : Capteur de pression, 6 : Sonde de niveau, 7 : Air

Annexe 2 : Evolution du débit en fonction de la hauteur de membrane immergée

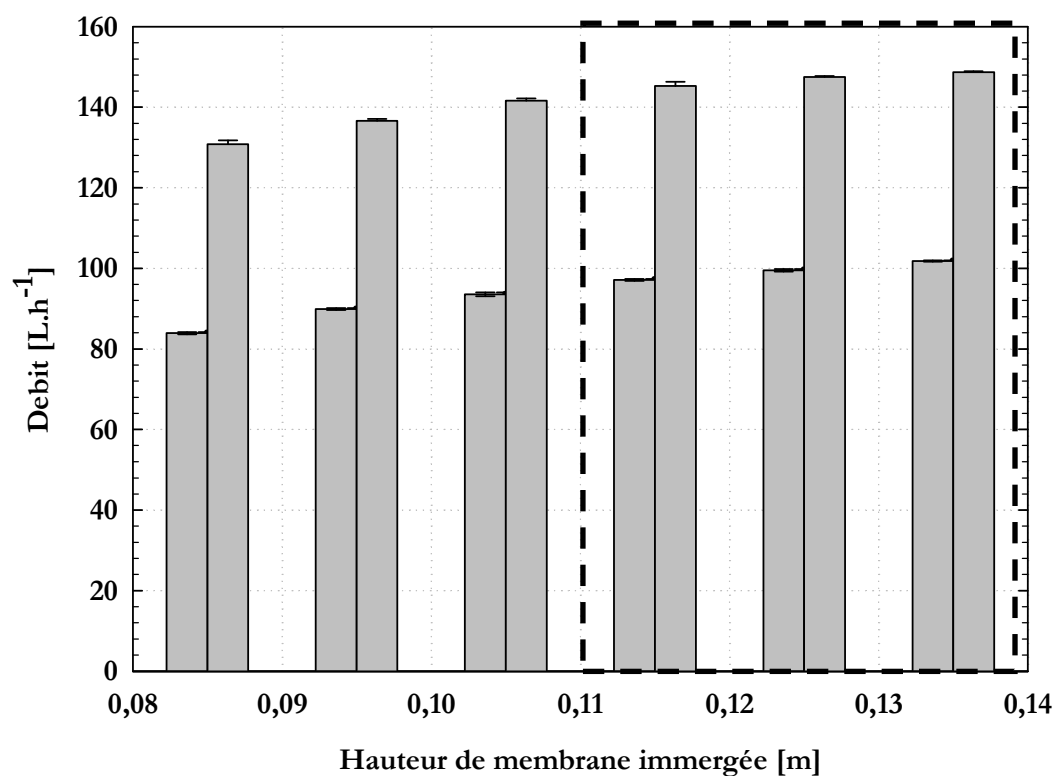


Figure 14. Evolution du débit de filtration en fonction de la hauteur de membrane immergée pour 0.4 bar (gauche) et 0.8 bar (droite). Ecart type sur 3 flux

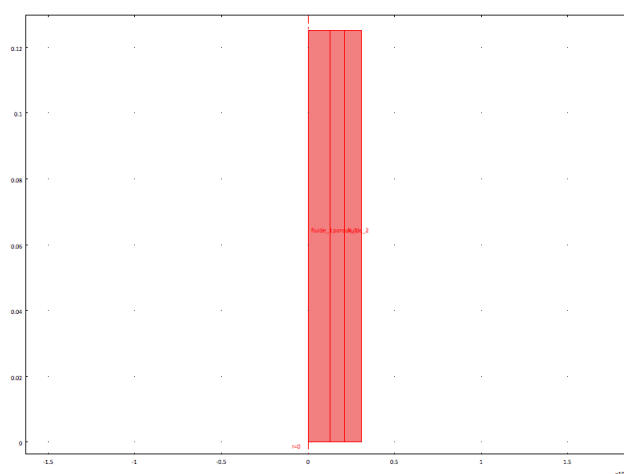
Le carré pointillé représente la zone de travail de la membrane avec 0,14 : membrane totalement immergée et 0,11 membrane partiellement immergée après filtration de 400mL du volume du réacteur.

Annexe 3 : Exemple de compte rendu du modèle faible compacité sur COMSOL multiphysics.

Constantes

Nom	Expression	Valeur	Description
rho	$1000[\text{kg}/(\text{m}^3)]$		kg/m ³
mu	$0.001[\text{Pa}\cdot\text{s}]$		Pa.s
Lpei	$712[\text{L}/\text{h}/(\text{m}^3)/\text{bar}]$		l.h-1.m-2.bar
Pe	$0.8[\text{bar}]$		Pa
Ps	$0[\text{bar}]$		Pa
l	$0.000125[\text{m}]$		m
Kmem	$L_{\text{pei}} \cdot \mu \cdot l$		m ²
Fz	$g \cdot \rho$		
g	$-9.82[\text{m}/(\text{s}^2)]$		

Géométrie

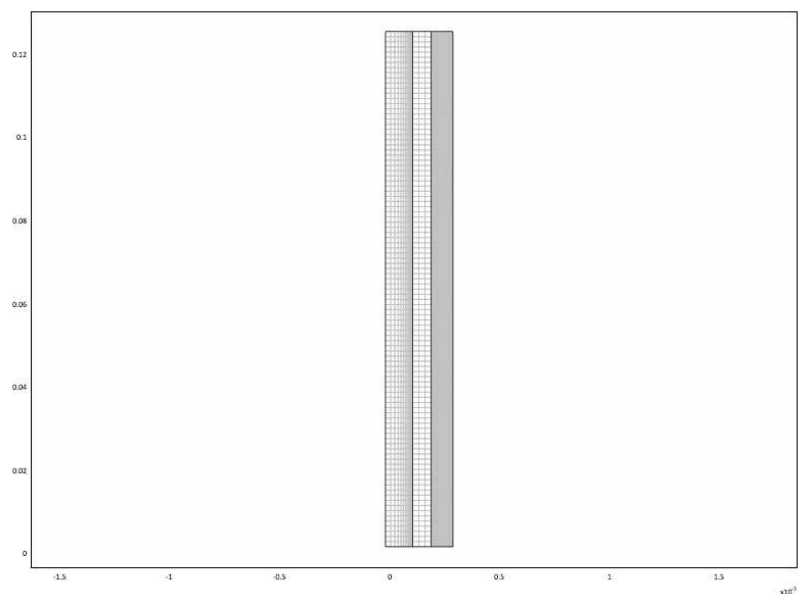


Maillage

Statistiques du Maillage

Nombre de degrés de liberté	62043
Nombre de noeuds	6969
Nombre d'éléments	6800
Triangulaire	0
Quadrilatéral	6800
Nombre d'éléments de frontière	536
Nombre de vertex	8

Qualité minimale des éléments	0.002
Ratio de surface de l'élément	0.055



Mode d'Application: Navier-Stokes Laminaire (chns)

Type de mode d'application: Navier-Stokes Laminaire (Module Génie Chimique)

Nom du mode d'application: chns

Propriétés du Mode d'Application

Propriété	Valeur
Type d'élément par défaut	Lagrange - P ₂ P ₁
Type d'analyse	Stationnaire
Lissage de coin anguleux	Off
Ecoulement Faiblement Compressible	Off
Modèle de turbulence	Aucun
Faisabilité	Off
Écoulement non-newtonien	Off
Équations de Brinkman par défaut	Off
Ecoulement diphasique	Ecoulement monophasique
Vitesse de rotation	Off
Frame	Frame (ref)
Contraintes faibles	Off
Type de contrainte	Idéal

Variables

Variables dépendantes: u, v, w, p, logk, logd, logw, phi, nrw, nzw

Fonctions de forme: shlag(2,'u'), shlag(2,'v'), shlag(1,'p')

Frontières internes non actives

Limites

Frontière		1	2, 5-6	3
Type		Frontière de symétrie	Paroi	Sortie
intype		uv	uv	p
outtype		p	p	p0
stresstype		totstress	totstress	ntotnflow
symtype		ax	sym	sym
Pression (p0)	Pa	0	0	(Ps)
Effort normal (f0)	N/m ²	0	0	(Pe)
Frontière		8	9	10
Type		Entrée	Paroi	Frontière de symétrie
intype		p	p	p
outtype		p0	p	p
stresstype		ntotnflow	ntotnflow	totstress
symtype		sym	sym	sym
Pression (p0)	Pa	(Pe)	(Pe)	(Pe)
Effort normal (f0)	N/m ²	(Ps)	(p0)	0

Sous-Domains

Sous-Domaine		1, 3	2
Ordre d'intégration (gporder)		4 4 2	4 4 2
Ordre de contrainte (cporder)		2 2 1	2 2 1
name		fluide	membrane
Densité (rho)	kg/m ³	rho	rho
Viscosité dynamique (eta)	Pa·s	mu	mu
Force de volume, z-dir. (F_z)	N/m ³	Fz	Fz
Porosité (epsilonp)	1	1	0.5
Perméabilité (k)	m ²	1	Kmem
Ecoulement en Milieu Poreux (Equations de Brinkman) (brinkmaneqns)		0	1

Variables

Frontière

Nom	Description	Unité	Expression
K_r_chns	Force de viscosité par unité de surface, r	Pa	$\eta_{\text{chns}} * (2 * n_{r_chns} * u_r + n_{z_chns} * (u_z + v_r))$
T_r_chns	Force totale sur surface, r	Pa	$-n_{r_chns} * p + 2 * n_{r_chns} * \eta_{\text{chns}} * u_r + n_{z_chns} * \eta_{\text{chns}} * (u_z + v_r)$
K_z_chns	Force de viscosité par unité de surface, z	Pa	$\eta_{\text{chns}} * (n_{r_chns} * (v_r + u_z) + 2 * n_{z_chns} * v_z)$
T_z_chns	Force totale sur surface, z	Pa	$-n_{z_chns} * p + n_{r_chns} * \eta_{\text{chns}} * (v_r + u_z) + 2 * n_{z_chns} * \eta_{\text{chns}} * v_z$

Sous-Domaine

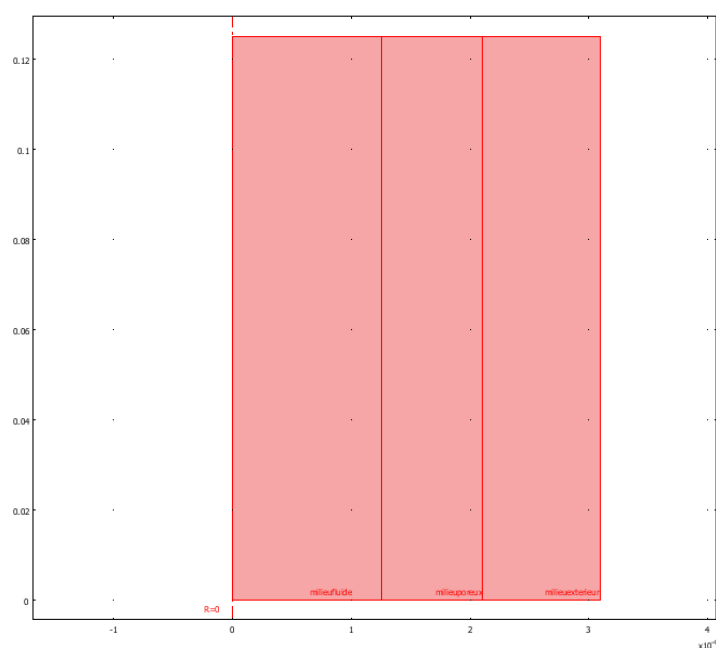
Nom	Description	Unité	Expression
U_chns	Champ de vitesses	m/s	$\sqrt{u^2 + v^2}$
V_chns	Vorticité	1/s	$u_z - v_r$
divU_chns	Divergence du champ de vitesse	1/s	$u_r + v_z + u/r$
cellRe_chns	Nombre de Reynolds de maille	1	$\rho_{\text{chns}} * U_{\text{chns}} * h / \eta_{\text{chns}}$
res_u_chns	Résidu de l'équation pour u	Pa	$r * (\rho_{\text{chns}} * (u * u_r + v * u_z) + p_r - F_{r_chns}) + 2 * \eta_{\text{chns}} * (u/r - u_r) - \eta_{\text{chns}} * r * (2 * u_{rr} + u_{zz} + v_{rz})$
res_sc_u_chns	Résidu de capture de choc pour u	Pa	$r * (\rho_{\text{chns}} * (u * u_r + v * u_z) + p_r - F_{r_chns}) + 2 * \eta_{\text{chns}} * (u/r - u_r)$
res_v_chns	Résidu de l'équation pour v	Pa	$r * (\rho_{\text{chns}} * (u * v_r + v * v_z) + p_z - F_{z_chns}) - \eta_{\text{chns}} * (r * (v_{rr} + u_{zr}) + 2 * r * v_{zz} + u_z + v_r)$
res_sc_v_chns	Résidu de capture de choc pour v	Pa	$r * (\rho_{\text{chns}} * (u * v_r + v * v_z) + p_z - F_{z_chns})$
beta_r_chns	Champ convectif, r	Pa*s	$r * \rho_{\text{chns}} * u$
beta_z_chns	Champ convectif, z	Pa*s	$r * \rho_{\text{chns}} * v$
Dm_chns	Coefficient moyen de diffusion	kg/s	$r * \eta_{\text{chns}}$
da_chns	Facteur d'échelle sur temps total	kg/m ²	$r * \rho_{\text{chns}}$
taum_chns	Echelle de temps GLS	m ³ *s/kg	$\text{nojac}(0.5 * h / \max(\rho_{\text{chns}} * U_{\text{chns}}, 6 * \eta_{\text{chns}} / h))$
tauc_chns	Echelle de temps GLS	m ² /s	$\text{nojac}(0.5 * U_{\text{chns}} * h * \min(1, \rho_{\text{chns}} * U_{\text{chns}} * h / \eta_{\text{chns}}))$

Annexe 3 : Exemple de compte rendu du modèle *dépôt* faible compacité sur COMSOL multiphysics.

Constantes

Nom	Expression	Valeur	Description
rho	$1000[\text{kg}/(\text{m}^3)]$		
mu	$0.001[\text{Pa}\cdot\text{s}]$		
g	$-9.82[\text{m}/(\text{s}^2)]$		
Fz	$g \cdot \text{rho}$		
Pe	$0.8[\text{bar}]$		
Ps	$0[\text{bar}]$		
Lpei	$712[\text{L}/(\text{s}/(\text{m}^3)/\text{bar})]$		
em	$85\text{e-}6[\text{m}]$		
C	$8[\text{g}/\text{L}]$		
rho1	$1073[\text{kg}/(\text{m}^3)]$		
epsilon	0.45		
q	$C/(\text{rho1} \cdot (1 - \text{epsilon}))$		
dg	$7\text{e-}6[\text{m}]$		

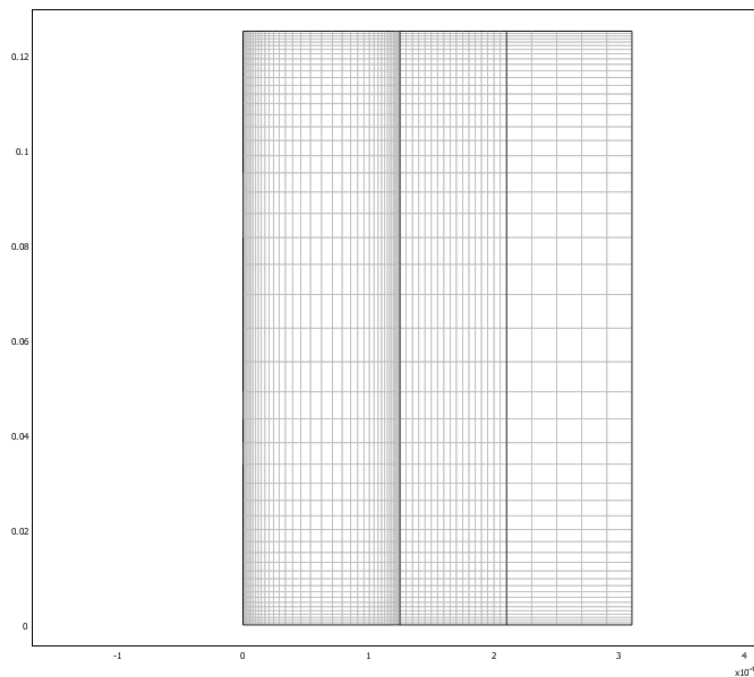
Géométrie



Maillage

Statistique du maillage

Nombre de degrés de liberté	54682
Nombre de noeuds	3213
Nombre d'éléments	3100
Triangulaire	0
Quadrilatéral	3100
Nombre d'éléments de frontière	324
Nombre de vertex	8
Qualité minimale des éléments	0
Ratio de surface de l'élément	0.002



Mode d'Application: maillage mobile (ALE)

Type de mode d'application: Maillage mobile (ALE)

Nom du mode d'application: ale

Propriétés du Mode d'Application

Propriété	Valeur
Type d'élément par défaut	Lagrange - Quadratique
Méthode de lissage	Laplace
Type d'analyse	Temporelle
Autoriser le remaillage	Off
frame définie	Frame (ale)
Frame de référence originale	Frame (ale)
Mouvement relatif à	Frame (ref)
Contraintes faibles	On
Type de contrainte	Non-idéal

Mode d'Application: Maillage Mobile (ALE) (ale)

Type de mode d'application: Maillage Mobile (ALE)

Nom du mode d'application: ale

Propriétés du Mode d'Application

Propriété	Valeur
Type d'élément par défaut	Lagrange - Quadratique
Méthode de lissage	Laplace
Type d'analyse	Temporelle
Autoriser le remaillage	Off
frame définie	Frame (ale)
Frame de référence originale	Frame (ale)
Mouvement relatif à	Frame (ref)
Contraintes faibles	On
Type de contrainte	Non-idéal

Variables

Variables dépendantes:

Fonctions de forme: shlag(2,'lm11'), shlag(2,'lm12'), shlag(2,'r'), shlag(2,'z')

Frontières internes actives

Limites

Frontière		1, 7-10	2-3, 5-6	4
Type		Déplacement du maillage	Vitesse du maillage	Vitesse du maillage
name		immobile	deplacement	vitesse
constrcoord		Repère global	Repère global	Sys. de coord. tangente et normale en maillage déformé
Vitesse du maillage (veldeform)	m/s	{0;0}	{-q*u;0}	{q*u;0}
defflag		{1;1}	{0;0}	{0;0}
veldefflag		{0;0}	{0;1}	{1;0}

Sous-Domains

Sous-Domaine		1-3
Fonctions de forme (shape)	shlag(2,'lm11') shlag(2,'lm12') shlag(2,'r') shlag(2,'z')	
Ordre d'intégration (gporder)		4 4

Condition initiale de sous-domaine		1-3
Coordonnées Spatiales (r)	m	rinit_ale
Coordonnées Spatiales (z)	m	zinit_ale

Mode d'Application: Navier-Stokes Laminaire (chns)

Type de mode d'application: Navier-Stokes Laminaire (Module Génie Chimique)

Nom du mode d'application: chns

Variables Scalaires

Nom	Variable	Valeur	Unité	Description
visc_vel_fact	visc_vel_fact_chns	10	1	Facteur de vitesse visqueuse

Propriétés du Mode d'Application

Propriété	Valeur
Type d'élément par défaut	Lagrange - P ₂ P ₁

Type d'analyse	Temporelle
Lissage de coin anguleux	Off
Ecoulement Faiblement Compressible	Off
Modèle de turbulence	Aucun
Réalisibilité	Off
Écoulement non-newtonien	Off
Équations de Brinkman par défaut	Off
Ecoulement diphasique	Ecoulement monophasique
Vitesse de rotation	Off
Frame	Frame (ale)
Contraintes faibles	Off
Type de contrainte	Idéal

Variables

Variables dépendantes: u, v, w, p, logk, logd, logw, phi, psi, nrw, nzw

Fonctions de forme: shlag(2,'u'), shlag(2,'v'), shlag(1,'p')

Frontières internes non actives

Limites

Frontière		1	2, 5-6, 9-10	3
Type		Frontière de symétrie	Paroi	Entrée
name		axe	paroi	entree
intype		Vitesse	Vitesse	Ecoulement entrant laminaire
outtype		Pression, pas d'effort visqueux	Pression, pas d'effort visqueux	Effort normal
symtype		Axisymétrie	Symétrie	Symétrie
Pression (p0)	Pa	0	0	Pe
Effort normal (f0)	N/m ²	0	0	(Pe)
Energie cinétique turbulente (k0)	m ² /s ²	0	0	0
taux de dissipation turbulent (d0)	m ² /s ³	0	0	0
Echelle de longueur turbulente (LT)	m	0.07	0.07	0.07

Intensité de turbulence (IT)	1	0.054	0.054	0.054
Offset du mur (dw)	m	h	h	h
Pression d'entrée (p0_entr)	Pa	0	0	Pe
Longueur de l'entrée (Lentr)	m	1	1	2.5e-2
Pression de sortie (p0_exit)	Pa	0	0	0
Longueur de la sortie (Lexit)	m	1	1	1
flowtype		velocity	velocity	pressure

Frontière		8
Type		Sortie
name		sortie
intype		Vitesse
outtype		Ecoulement sortant laminaire
symtype		Symétrie
Pression (p0)	Pa	Ps
Effort normal (f0)	N/m ²	(Ps)
Energie cinétique turbulente (k0)	m ² /s ²	0
taux de dissipation turbulent (d0)	m ² /s ³	0
Echelle de longueur turbulente (LT)	m	0.07
Intensité de turbulence (IT)	1	0.054
Offset du mur (dw)	m	h
Pression d'entrée (p0_entr)	Pa	0
Longueur de l'entrée (Lentr)	m	1
Pression de sortie (p0_exit)	Pa	Ps
Longueur de la sortie (Lexit)	m	0
flowtype		pressure

Sous-Domaine		1, 3	2
Ordre d'intégration (gporder)		4 4 2	4 4 2
Ordre de contrainte (cporder)		2 2 1	2 2 1
name		fluide	membrane
Densité (rho)	kg/m ³	rho	rho

Viscosité dynamique (eta)	Pa·s	mu	mu
Force de volume, z-dir. (F_z)	N/m ³	Fz	Fz
Porosité (epsilonp)	1	1	0.5
Perméabilité (k)	m ²	1	Ktot
Ecoulement en Milieu Poreux (Equations de Brinkman) (brinkmaneqns)		0	1
sdon		0	0
cdon		0	0
idTon		1	1
delidT		0.5	0.5
sdTtype		Diffusion anisotrope	Diffusion anisotrope
Coefficient de tension de surface (sigma)	N/m	0	0

Annexe 4 : Exemple de compte rendu du modèle *3D* faible compacité sur COMSOL multiphysics.

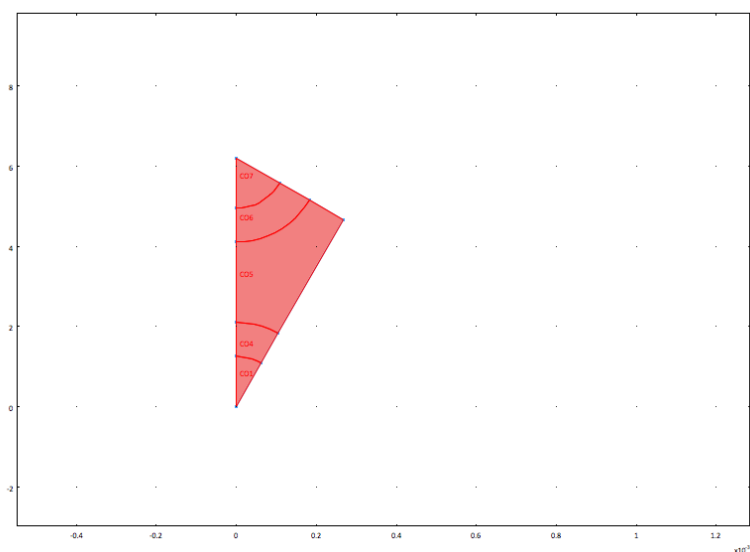
Constantes

Nom	Expression	Description
rho	1000[kg/(m*m*m)]	kg/m3
mu	0.001[Pa*s]	Pa.s
Lpei	712[L/h/(m*m)/bar]	l.h-1.m-2.bar
Pe	0.8[bar]	Pa
Ps	0[bar]	Pa
l	0.000125[m]	m
Kmem	Lpei*mu*l	m2
Fz	g*rho	
g	-9.82[m/(s*s)]	

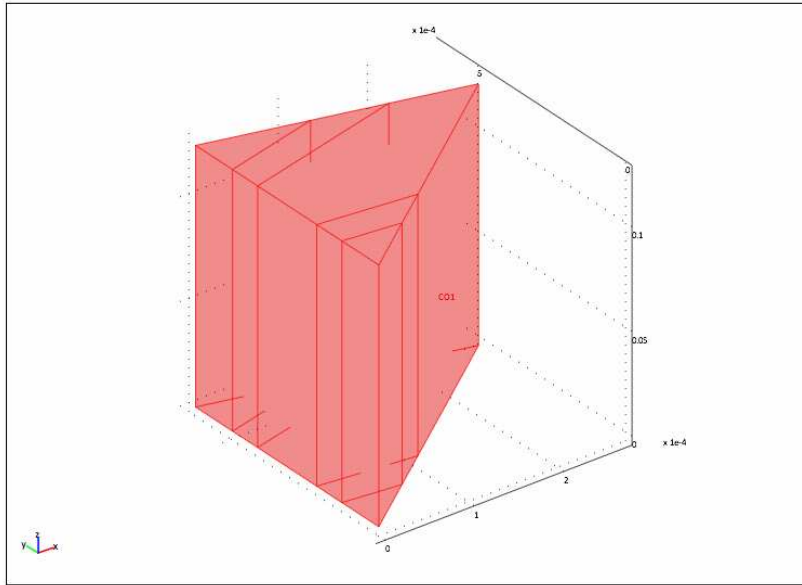
Géométrie

Nombres de géométries: 2

Geom1



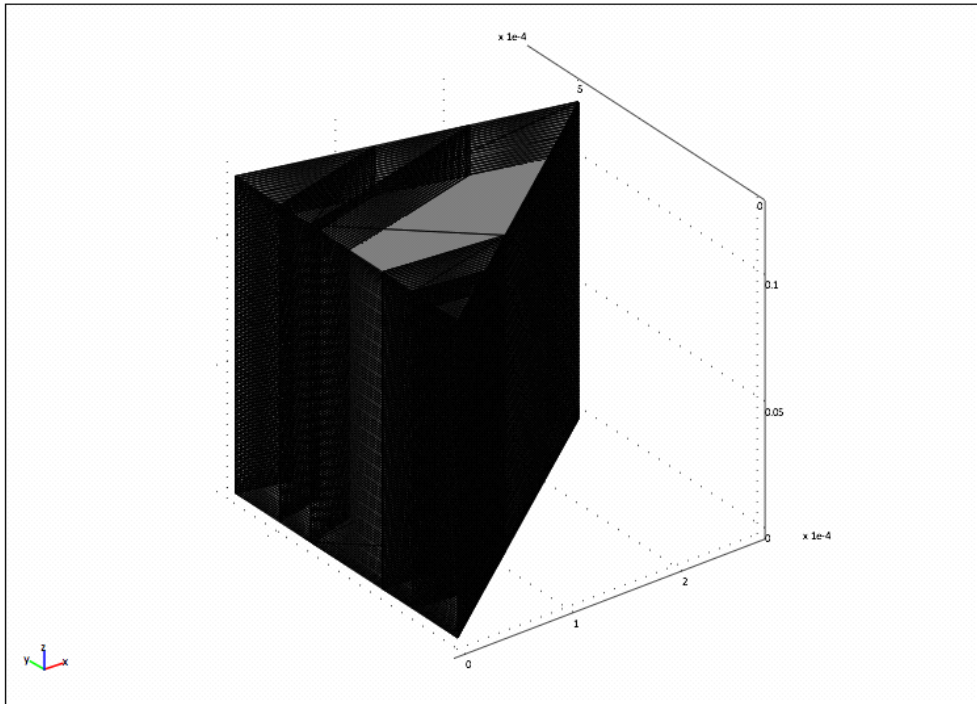
Geom2



Maillage

Statistiques du Maillage

Nombre de degrés de liberté	27639
Nombre de noeuds	1318
Nombre d'éléments	3415
Tétraédrique	3415
Prisme	0
Hexahédral	0
Nombre d'éléments de frontière	3573
Triangulaire	3573
Quadrilatéral	0
Nombre d'éléments d'arête	1321
Nombre de vertex	22
Qualité minimale des éléments	0.024
Ratio de volume de l'élément	0.003



Mode d'Application: Navier-Stokes Laminaire (chns)

Type de mode d'application: Navier-Stokes Laminaire (Module Génie Chimique)

Nom du mode d'application: chns

Dimensions d'espace: 3D

Variables indépendantes: x, y, z

Propriétés du Mode d'Application

Propriété	Valeur
Type d'élément par défaut	Lagrange - P ₂ P ₁
Type d'analyse	Stationnaire
Lissage de coin anguleux	Off
Ecoulement Faiblement Compressible	Off
Modèle de turbulence	Aucun
Faisabilité	Off

Écoulement non-newtonien	Off
Équations de Brinkman par défaut	Off
Ecoulement diphasique	Ecoulement monophasique
Frame	Frame (xyz)
Contraintes faibles	Off
Type de contrainte	Idéal

Variables

Variables dépendantes: u, v, w, p, logk, logd, logw, phi, nxw, nyw, nzw

Fonctions de forme: shlag(2,'u'), shlag(2,'v'), shlag(2,'w'), shlag(1,'p')

Frontières internes non actives

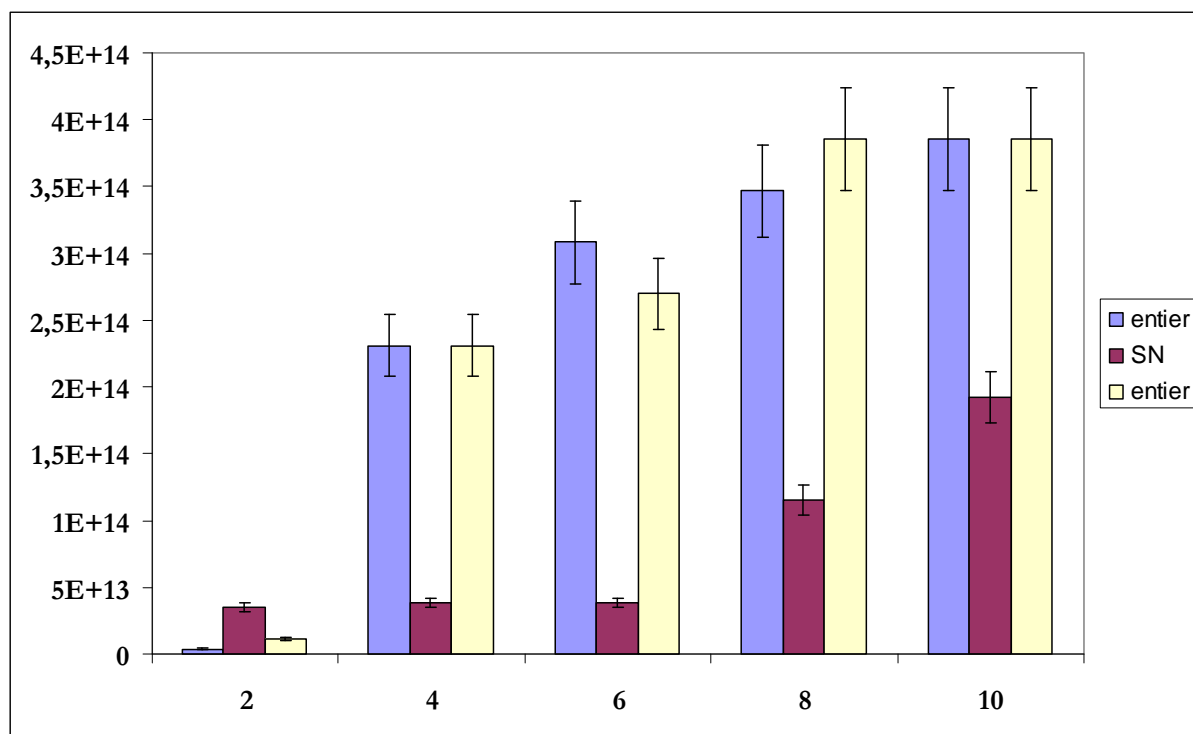
Limites

Frontière		1-2, 5, 9, 13, 17, 21-25	3, 7-8, 12, 15-16, 19	4, 20
Type		Frontière de symétrie	Paroi	Entrée
intype		uv	uv	p
outtype		p	p	p
Pression (p0)	Pa	0	0	Pe
Frontière		11		
Type		Sortie		
intype		uv		
outtype		p0		
Pression (p0)	Pa	Ps		

Frontière

Nom	Description	Unité	Expression
K_x_chns	Force de viscosité par unité de surface, x	Pa	$\eta_{\text{chns}} * (2 * n_{x_chns} * u_x + n_{y_chns} * (u_y + v_x) + n_{z_chns} * (u_z + w_x))$
T_x_chns	Force totale sur surface, x	Pa	$-n_{x_chns} * p + 2 * n_{x_chns} * \eta_{\text{chns}} * u_x + n_{y_chns} * \eta_{\text{chns}} * (u_y + v_x) + n_{z_chns} * \eta_{\text{chns}} * (u_z + w_x)$
K_y_chns	Force de viscosité par unité de surface, y	Pa	$\eta_{\text{chns}} * (n_{x_chns} * (v_x + u_y) + 2 * n_{y_chns} * v_y + n_{z_chns} * (v_z + w_y))$
T_y_chns	Force totale sur surface, y	Pa	$-n_{y_chns} * p + n_{x_chns} * \eta_{\text{chns}} * (v_x + u_y) + 2 * n_{y_chns} * \eta_{\text{chns}} * v_y + n_{z_chns} * \eta_{\text{chns}} * (v_z + w_y)$
K_z_chns	Force de viscosité par unité de surface, z	Pa	$\eta_{\text{chns}} * (n_{x_chns} * (w_x + u_z) + n_{y_chns} * (w_y + v_z) + 2 * n_{z_chns} * w_z)$
T_z_chns	Force totale sur surface, z	Pa	$-n_{z_chns} * p + n_{x_chns} * \eta_{\text{chns}} * (w_x + u_z) + n_{y_chns} * \eta_{\text{chns}} * (w_y + v_z) + 2 * n_{z_chns} * \eta_{\text{chns}} * w_z$

**Annexe 5 : Evolution de la résistance spécifique de
filtration en fonction du temps de culture de *Lactococcus*
lactis.**



Annexe 6: Evolution de la résistance spécifique de filtration à t=10h pour une culture de *Yarrowia lipolytica*

.

